

SINTESIS DAN FABRIKASI KERAMIK $(Mg_{0,8}Zn_{0,2})TiO_3 + 2 \text{ wt}\% Bi_2O_3$ SEBAGAI BAHAN DIELEKTRIK SERTA KARAKTERISASI STRUKTUR DAN DENSITASNYA AKIBAT VARIASI WAKTU TAHAN SINTER

¹⁾Nanda Rettingtyas, ²⁾Frida U. Ermawati

^{1,2)}Program Studi Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Surabaya

email: ¹⁾nandarettiningtyas16030224015@mhs.unesa.ac.id, ²⁾frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

Telah dilakukan sintesis serbuk $(Mg_{0,8}Zn_{0,2})TiO_3$ disingkat MZT02 dan fabrikasi keramik MZT02 + 2 wt% Bi_2O_3 disingkat MZT02-2. Sintesis serbuk MZT02 tersebut dilakukan menggunakan metode pencampuran larutan dengan bahan awal berupa serbuk logam Mg, Zn, Ti (*Merck*) dan HCl 12 M (37 %) sebagai pelarut. Serbuk MZT02 hasil sintesis dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 2 jam. Fabrikasi keramik MZT02-2 dilakukan dengan *ball milling* serbuk MZT02 + 2 wt% Bi_2O_3 (untuk mempercepat proses pemadatan), kompaksi pada tekanan 20 MPa dan sinter pada suhu 1100 °C dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam. Karakterisasi struktur dengan uji XRD menunjukkan bahwa serbuk MZT02 mengandung $MgTiO_3$ dengan % molar = 8,76; sedangkan keramik dengan waktu tahan sinter 4 dan 6 jam mengandung $MgTiO_3$ dengan % molar = 92,61 dan 94,44 sisanya TiO_2 *rutile* sebagai fasa impuritas. Pada keramik dengan waktu tahan sinter 8 jam terdapat 3 fasa, yaitu $MgTiO_3 = 83,83$ % molar; $MgTi_2O_5 = 8,44$ % molar dan sisanya TiO_2 *rutile*. Bertambahnya waktu tahan sinter menyebabkan parameter kisi dan volume sel satuan pada keramik MZT02-2 berkurang. Karakterisasi densitas dilakukan dengan uji densitimeter menggunakan metode Archimedes yang hasilnya berturut-turut 3,382; 3,582 dan 3,667 g/cm³ untuk keramik dengan waktu tahan sinter 4, 6 dan 8 jam. Dapat disimpulkan bahwa waktu tahan sinter mempengaruhi struktur maupun densitas keramik MZT02-2. Kandungan $MgTiO_3$ yang tinggi (> 90 % molar) dan densitas yang tinggi ($\geq 3,5$) menunjukkan bahwa keramik MZT02-2 berpotensi sebagai kandidat bahan dielektrik yang baik, misalnya komponen untuk divais elektronik dan sistem komunikasi nirkabel.

Kata Kunci: metode pencampuran larutan, fabrikasi keramik, MZT02, MZT02-2, Bi_2O_3 .

Abstract

Synthesis of powder $(Mg_{0,8}Zn_{0,2})TiO_3$ abbreviated as MZT02 and fabrication of MZT02 + 2 wt% Bi_2O_3 ceramics (abbreviated as MZT02-2) have been carried out. The MZT02 powder synthesis was completed using a liquid mixing method with starting material in the form of metal powder Mg, Zn, Ti (*Merck*) and 12 M HCl (37%) as a solvent. The MZT02 powder was calcined at 550 °C for 2 hours. Fabrication of MZT02-2 ceramics was carried out with ball milling MZT02 powder + 2 wt% Bi_2O_3 (to speed up the compaction process) and press the compacted powder at 20 MPa followed by sinter at 1100 °C with variations in a holding time of 4, 6 and 8 hours. Structure characterization by XRD showed that the MZT02 powder contained $MgTiO_3$ with a % molar = 8,76; while ceramics with a holding time of 4 and 6 hours contain $MgTiO_3$ with a % molar = 92,61 and 94,44; the remaining is TiO_2 *rutile* as an impurity phase. There are 3 phases in ceramics with holding time of 8 hours, namely $MgTiO_3 = 83,83$ % molar; $MgTi_2O_5 = 8,44$ % molar and the remaining is TiO_2 *rutile*. Increasing the holding time causes lattice parameters and unit cell volumes in MZT02-2 ceramics to decrease. Density characterization of the ceramics was carried out using the Archimedes method and the result is 3,382; 3,582 and 3,667 for 4, 6 and 8 hours of a holding time. It can be concluded that the holding time affects the structure and density of MZT02-2 ceramics. High content of $MgTiO_3$ (> 90 % molar) and high density ($\geq 3,5$) indicates that MZT02-2 are potential candidates for good dielectric materials, for example as components for electronic devices and wireless communication systems.

Keywords: liquid mixing method, ceramic fabrication, MZT02, MZT02-2, Bi_2O_3 .

PENDAHULUAN

Berkembangnya ilmu pengetahuan dapat memunculkan inovasi-inovasi baru dalam bidang teknologi maupun industri. Dalam bidang teknologi, komponen-komponen telekomunikasi berkembang pesat, misalnya pada sistem komunikasi nirkabel, komunikasi

satelit dan antenna. Sedangkan dalam bidang industri, hasil-hasilnya dapat berkembang baik dalam segi kualitas maupun daya guna, misalnya kapasitor dan resonator sebagai komponen untuk divais elektronik. Komponen elektronik tersebut banyak dikembangkan dari material

keramik seperti *magnesium titanate* ($MgTiO_3$) (Kang et al., 2008; Zhang et al., 2018).

$MgTiO_3$ merupakan keramik yang berpotensi sebagai komponen elektronik pada kapasitor, resonator, filter, antena, sistem modern komunikasi nirkabel, radar, satelit penyiaran langsung dan *global positioning system* yang beroperasi pada frekuensi gelombang mikro (Kang et al., 2008; Zhang et al., 2018). Menurut Zhang et al., (2018), keramik $MgTiO_3$ memiliki keunggulan, yaitu nilai konstanta dielektrik tinggi ($\epsilon_r \sim 18,38$) sehingga dimensi keramik $MgTiO_3$ dapat diperkecil (dalam skala milimeter), namun dengan kemampuan yang tetap sama seperti tanpa memperkecil dimensinya. Selain itu $MgTiO_3$ juga dilaporkan memiliki nilai faktor kualitas yang tinggi ($Q_{xf} \sim 169.900$) yang mampu meningkatkan kemampuan memilah frekuensi dan memiliki nilai koefisien temperatur mendekati nol ($\tau_f \sim -1$ ppm/ $^{\circ}C$) pada frekuensi resonansi.

$MgTiO_3$ umumnya disintesis dengan beberapa macam metode. *Pertama*, *solid state reaction* yang dilaporkan oleh Sreedhar et al., (2002) pada suhu kalsinasi 1200 $^{\circ}C$. Hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa fasa $MgTiO_3$ telah terbentuk sebagai fasa utama dan menyisakan $MgTi_2O_5$ sebagai fasa sekunder. *Kedua*, metode *hydrothermal mechanical-chemical complexation* yang dilaporkan oleh Baek et al., (1996) menghasilkan $MgTiO_3$ sebagai fasa utama dan $MgTi_2O_5$ sebagai fasa sekunder setelah dikalsinasi pada suhu 900 $^{\circ}C$. *Terakhir*, metode sol-gel yang dilaporkan oleh Surendran et al., (2008) juga menghasilkan $MgTiO_3$ sebagai fasa utama disertai dengan Mg_2TiO_4 dan TiO_2 -*rutile* pada suhu kalsinasi 750 dan 775 $^{\circ}C$.

Selain metode-metode yang telah disebutkan di atas, terdapat pula metode pencampuran larutan yang dilaporkan juga dapat membentuk fasa $MgTiO_3$ namun pada suhu kalsinasi yang jauh lebih rendah. Berikut ditunjukkan beberapa hasil sintesis $MgTiO_3$ menggunakan metode pencampuran larutan yang telah dilaporkan oleh beberapa peneliti. R Angela & Suminar Pratapa (2012) melaporkan bahwa $MgTiO_3$ terbentuk pada suhu kalsinasi 800 $^{\circ}C$. Selanjutnya, Ika & Ermawati (2019) melaporkan terbentuknya $MgTiO_3$ sebagai fasa utama pada suhu kalsinasi 550 $^{\circ}C$ disertai dengan MgO serta TiO_2 sebagai fasa impuritas. Berdasarkan literatur *review* tersebut, metode pencampuran larutan sangat baik digunakan untuk membentuk fasa $MgTiO_3$ pada suhu kalsinasi yang lebih rendah jika dibandingkan dengan suhu kalsinasi $MgTiO_3$ menggunakan metode-metode sintesis lain yang telah disebutkan di atas.

Fabrikasi keramik $MgTiO_3$ telah banyak dilaporkan (Ermawati et al., 2016; Adikaning & Suasmoro, 2016; Saukani & Suasmoro, 2015; Zhang et al., 2018). Diantaranya dilakukan dengan cara mendoping Zn pada kation Mg. Penggunaan ion Zn sebagai pendoping ion Mg didasarkan pada beberapa fakta bahwa, *pertama*, baik ion Mg maupun ion Zn keduanya mempunyai bilangan koordinasi yang sama yaitu *octahedral coordination* sehingga apabila ion Zn digunakan sebagai pendoping Mg, maka tidak akan mengubah struktur $MgTiO_3$ yang dihasilkan. *Kedua*, jari-jari ion Zn hampir sama dengan jari-jari ion Mg, yaitu $0,074$ nm untuk Zn dan $0,072$ nm

untuk Mg (Chiang, 1997) sehingga dengan doping ion Zn tersebut diharapkan dapat membentuk larutan padat substitusi ($Mg_{1-x}Zn_x$) TiO_3 dan tidak menimbulkan fasa lain yang mengandung Zn. *Ketiga*, ion Zn mempunyai titik leleh yang rendah yaitu 419 $^{\circ}C$ (MSDS Zn). Titik leleh ion Zn tersebut lebih rendah dari suhu pembentukan $MgTiO_3$ yaitu 800 $^{\circ}C$ seperti yang dilaporkan oleh R Angela & Pratapa (2012). Dalam bentuk keramik, tujuan digunakannya Zn sebagai pendoping Mg adalah untuk meningkatkan densitas keramik. Seperti yang dilaporkan oleh Ermawati (2016), densitas keramik ($Mg_{1-x}Zn_x$) TiO_3 yang tinggi ($3,7-3,8$ g/ cm^3) baru bisa dicapai apabila suhu sinter yang digunakan tinggi, yaitu 1400 $^{\circ}C$ yang ditahan 8 jam.

Suhu sinter keramik yang tinggi sedapat mungkin dihindari karena beberapa alasan, *pertama*, *furnace* dengan suhu tinggi hanya dapat ditemukan di Laboratorium tertentu saja. *Kedua*, sinter dengan suhu tinggi memerlukan biaya yang tinggi pula. *Ketiga*, suhu sinter tinggi dapat memperbesar ukuran butir. Menurut Kingery (1976), sifat dielektrik keramik dipengaruhi oleh keberadaan fasa utama dan fasa sekunder serbuk beserta mikrostrukturnya. Mikrostruktur yang dimaksud adalah butir, batas butir dan pori-pori, dimana semakin besar ukuran butir maka sifat dielektrik keramik semakin berkurang. Demikian pula dengan pori-pori, semakin besar volume pori-pori di dalam bahan keramik, maka sifat permitivitas keramik juga semakin berkurang karena permitivitas yang dimiliki oleh keramik tersebut merupakan gabungan antara permitivitas bahan itu sendiri dengan permitivitas ruang hampa (pori-pori).

Kembali ke pembahasan tentang suhu sinter keramik tersebut di atas. Suhu sinter yang tinggi dapat dicegah antara lain dengan penambahan bahan oksida fasa cair (*liquid additive agent* (LAA)) tertentu yang mempunyai titik leleh lebih rendah dari suhu sinter keramik yang hendak dituju. Pada prinsipnya, penggunaan bahan LAA tersebut adalah ketika titik leleh bahan LAA dicapai selama proses sinter berlangsung, maka LAA berubah menjadi fasa cair dan selanjutnya fasa cair tersebut mengisi pori-pori diantara butir $MgTiO_3$. Terisinya pori-pori dapat mempercepat proses pemadatan keramik $MgTiO_3$ sehingga dapat menurunkan suhu sinter. Salah satu bahan LAA yang dilaporkan telah digunakan adalah *bismuth (III) oxide* (Bi_2O_3). Berikut adalah penjelasannya.

Bi_2O_3 sebesar $7,5$ wt% ditambahkan pada senyawa ZnO yang dilaporkan oleh Tambunan & Malik (2012) dapat menurunkan suhu sinter dari 1200 menjadi 1050 $^{\circ}C$ dengan waktu tahan 2 jam. Selanjutnya, penambahan $0,8$ wt% Bi_2O_3 pada senyawa $BaTiO_3$ dilaporkan oleh Wu et al., (2010) dapat menurunkan suhu sinter dari 1300 menjadi 1130 $^{\circ}C$ dengan waktu tahan 6 jam tanpa adanya fasa impuritas. Kemudian lima tahun berikutnya, Saukani & Suasmoro (2015) memperoleh penurunan suhu sinter dari 1350 menjadi 1100 $^{\circ}C$ dengan waktu tahan 4 jam pada keramik $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ dengan penambahan 4 wt% Bi_2O_3 .

Waktu tahan yang berbeda-beda selama proses sinter ternyata berpengaruh terhadap struktur maupun densitas dari sampel uji (Liu et al., 2019; Sun et al., 2018;

Wang et al., 2019). Menurut Wang et al., (2019) pengaruh waktu tahan sinter terhadap struktur terjadi pada lapisan kaca-keramik BN/Si_2N_2O yang disinter pada suhu $1050 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan variasi waktu tahan 1, 2, 3 dan 4 jam. Hasil yang didapatkan, yaitu komposisi fasa dan % kristalinitas yang berbeda-beda setiap waktu tahan sinter. Selanjutnya, Sun et al., (2018) melaporkan pengaruh waktu tahan sinter terhadap densitas pada senyawa $ZrO_2-Al_2O_3$ yang disinter pada suhu $1500 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan variasi waktu tahan 20, 60 dan 90 menit. Hasil yang diperoleh, yaitu semakin lama waktu tahan sinter maka densitas yang dihasilkan juga semakin meningkat.

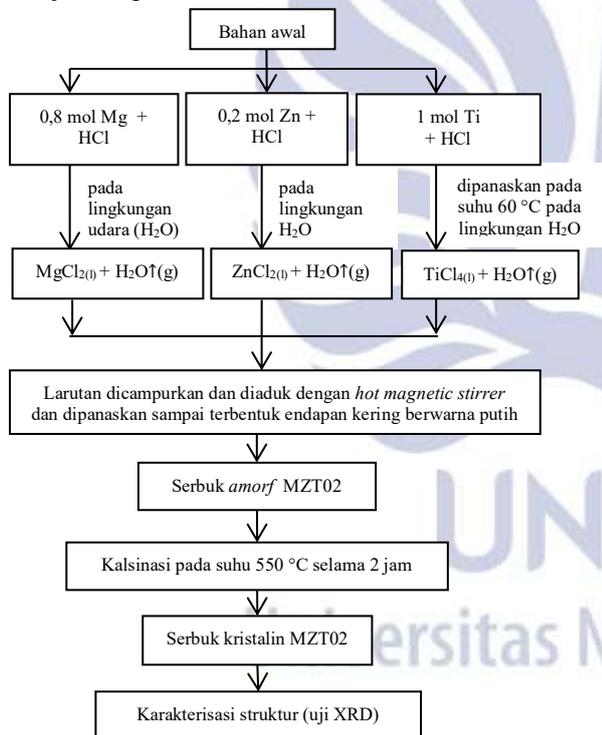
Berdasarkan latar belakang di atas, Peneliti bermaksud untuk mensintesis serbuk MZT02, memfabrikasi keramik MZT02 + 2 wt% Bi_2O_3 serta mempelajari pengaruh waktu tahan sinter terhadap struktur dan densitas keramik tersebut. Waktu tahan sinter yang dimaksud adalah 4, 6 dan 8 jam pada suhu $1100 \text{ }^\circ\text{C}$.

METODE

A. Rancangan Penelitian

Sintesis Serbuk MZT02

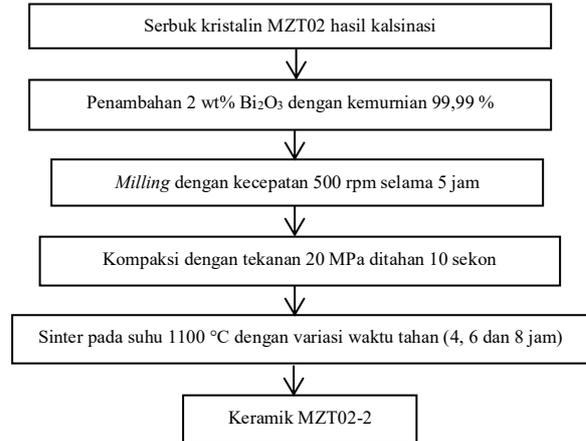
Rancangan penelitian pada tahap sintesis serbuk MZT02 ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Rancangan penelitian pada tahap sintesis serbuk MZT02.

Fabrikasi Keramik MZT02-2

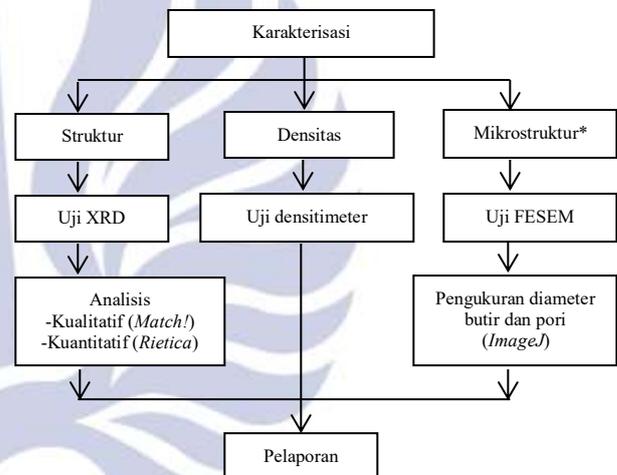
Rancangan penelitian pada tahap fabrikasi keramik MZT02-2 ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Rancangan penelitian pada tahap fabrikasi keramik MZT02-2.

Karakterisasi Keramik MZT02-2

Rancangan penelitian pada tahap karakterisasi keramik MZT02-2 ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Rancangan penelitian pada tahapan karakterisasi keramik MZT02-2.

Keterangan:

* = sampai dengan artikel ini selesai ditulis dan siap diujikan, data mikrostruktur (hasil uji FESEM) yang tersedia hanya untuk keramik MZT02-2 dengan waktu tahan sinter 4 jam saja, sedangkan pengukuran FESEM untuk ke-2 sisa keramik MZT02-2 lainnya belum dapat dilakukan karena lab uji harus lockdown akibat pandemi Covid-19.

B. Variabel Operasional Penelitian

Variabel yang digunakan pada penelitian ini adalah sebagai berikut.

Variabel manipulasi : waktu tahan sinter (4, 6 dan 8 jam).

Variabel respon : struktur, densitas dan mikrostruktur keramik MZT02-2.

Variabel kontrol : bahan awal berupa serbuk logam Mg, Zn, Ti (Merck), jumlah persen berat Bi_2O_3 (2 wt%), suhu dan waktu tahan kalsinasi ($550 \text{ }^\circ\text{C}$ waktu tahan 2 jam), suhu sinter ($1100 \text{ }^\circ\text{C}$), alat furnace, die press dan hydraulic hand press merk BWS, planetary ball mill merk BWS, XRD Bragg-Brentano Philips X'pert

diffractometer, densitimeter *Balance Mettler Toledo* tipe ME 403 E dan *Density kit* ME-DNY-43.

C. Teknik Pengumpulan Data

Seperti telah disebutkan di atas, data yang dikumpulkan pada penelitian ini adalah data struktur, densitas dan mikrostruktur. Data struktur diperoleh dari hasil uji XRD menggunakan *Bragg-Brentano Philips X'Pert Diffractometer* dengan radiasi $Cu-K\alpha$ pada rentang sudut $15-65^\circ$ dan langkah $0,02^\circ/\text{menit}$. Data densitas diperoleh dari uji densitimeter menggunakan *Balance Mettler Toledo* tipe ME 403 E dan *Density kit* ME-DNY-43 dengan metode Archimedes. Data mikrostruktur diperoleh dari uji FESEM menggunakan FEI model *Inspect F50*.

D. Teknik Pengolahan Data

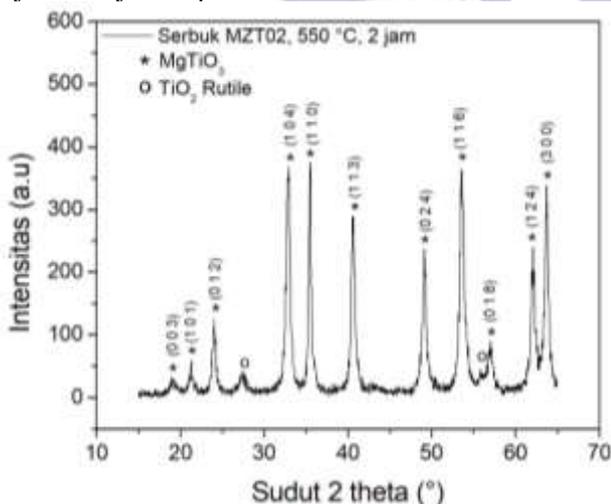
Pengolahan data struktur dilakukan dengan analisis secara kualitatif dan kuantitatif. Analisis kualitatif tersebut dilakukan menggunakan *software Match!* untuk mengidentifikasi fasa-fasa yang terkandung dalam sampel uji, sedangkan analisis kuantitatif dilakukan menggunakan metode *Rietveld* dengan *software Rietica* untuk mengetahui komposisi fasa dalam sampel uji. Pengolahan data mikrostruktur dilakukan dengan pengukuran diameter butir dan pori-pori menggunakan *software ImageJ*.

HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Hasil

1. Karakterisasi Struktur Serbuk Kristalin MZT02 Analisis Kualitatif (Identifikasi Fasa)

Hasil identifikasi fasa dari pola XRD serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam ditunjukkan pada Gambar 4.

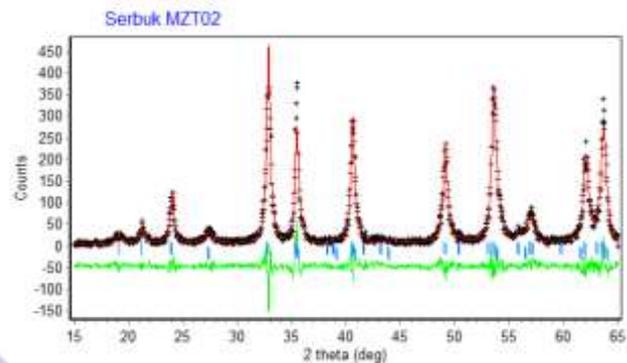


Gambar 4. Pola XRD serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam, (**indeks Miller* = $MgTiO_3$, o = TiO_2 rutile).

Pada Gambar 4, puncak-puncak difraksi dengan simbol "**indeks Miller*" menunjukkan puncak fasa $MgTiO_3$, sedangkan puncak-puncak dengan simbol "o" menunjukkan puncak fasa TiO_2 rutile. Dapat disimpulkan bahwa serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam mengandung 2 fasa, yaitu $MgTiO_3$ (PDF 06-0494) sebagai fasa utama dan TiO_2 rutile (PDF 448-453) sebagai fasa impuritas minor.

Analisis Kuantitatif (Komposisi Fasa)

Hasil penghalusan *Rietveld* pada serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Hasil penghalusan *Rietveld* pada serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam (GoF = 1,577 %, R_p = 13,85 %, R_{wp} = 19,06 %, R_{exp} = 15,17 %).

Pada Gambar 5, simbol "+" menunjukkan pola difraksi terukur (eksperimen), garis merah menunjukkan pola difraksi terhitung (model), dan garis hijau menunjukkan selisih intensitas antara pola difraksi terukur dengan pola difraksi terhitung. Garis-garis tegak kecil berwarna biru menunjukkan posisi puncak *Bragg* untuk semua fasa yang teridentifikasi berdasarkan *software Match!* Data komposisi fasa serbuk MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam ditunjukkan pada Tabel 1.

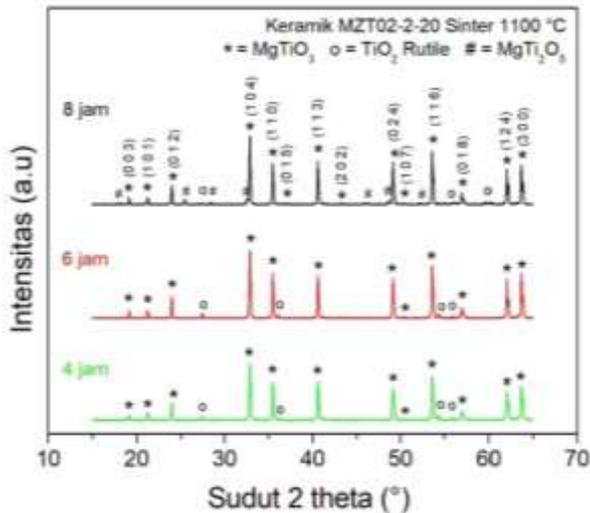
Tabel 1. Data komposisi fasa serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam.

Parameter	Fasa yang teridentifikasi		
	$MgTiO_3$	TiO_2	
Parameter	a=b	$5,0604 \pm 0,0008$	$4,6000 \pm 0,0036$
kisi (Å)	c	$13,9099 \pm 0,0033$	$3,0090 \pm 0,0048$
Volume sel satuan (Å ³)		$308,486 \pm 0,101$	$63,682 \pm 0,125$
% molar		$88,76 \pm 8,91$	$11,24 \pm 1,19$

Dapat dilihat pada Tabel 1, serbuk kristalin MZT02 tersusun dari fasa $MgTiO_3$ dan TiO_2 rutile. Nilai % molar $MgTiO_3$ = $(88,76 \pm 8,91)$ menunjukkan bahwa serbuk kristalin MZT02 hasil kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 2 jam telah mengandung fasa $MgTiO_3$ yang dibutuhkan.

2. Karakterisasi Struktur Keramik MZT02-2 Analisis Kualitatif (Identifikasi Fasa)

Pola XRD keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam ditunjukkan pada Gambar 6.

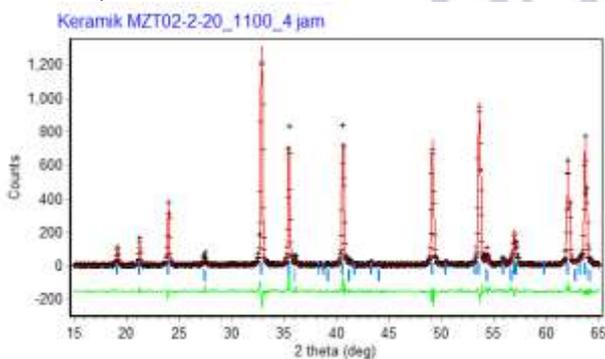


Gambar 6. Pola XRD keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam pada sudut 2θ 15-65°. (*indeks Miller = $MgTiO_3$, o = TiO_2 rutile, # = $MgTi_2O_5$).

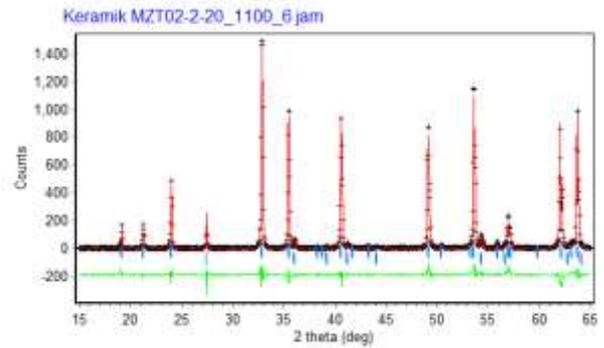
Pada Gambar 6, puncak-puncak difraksi dengan simbol “*indeks Miller” menunjukkan bahwa puncak tersebut milik fasa $MgTiO_3$, puncak-puncak difraksi dengan simbol “o” menunjukkan bahwa puncak tersebut milik fasa TiO_2 rutile dan puncak-puncak difraksi dengan simbol “#” menunjukkan bahwa puncak tersebut milik fasa $MgTi_2O_5$. Keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4 dan 6 jam mempunyai 2 fasa, yaitu $MgTiO_3$ sebagai fasa utama dan TiO_2 rutile sebagai fasa impuritas. Namun dengan waktu tahan sinter 8 jam, keramik MZT02-2 mengandung 3 fasa, yaitu $MgTiO_3$ sebagai fasa utama, $MgTi_2O_5$ sebagai fasa sekunder dan TiO_2 rutile sebagai fasa impuritas.

Analisis Kuantitatif (Komposisi Fasa)

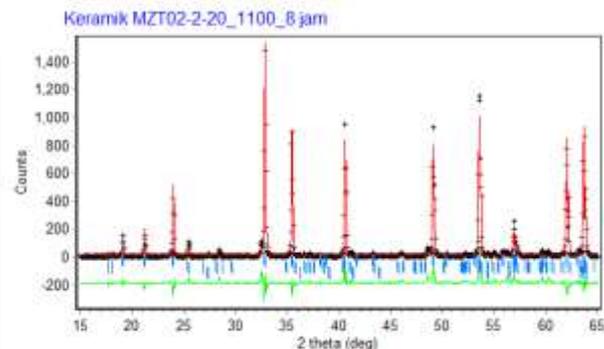
Analisis kuantitatif dengan penghalusan *Rietveld* yang dilakukan pada keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan sinter 4, 6 dan 8 jam ditunjukkan pada Gambar 7, 8 dan 9.



Gambar 7. Hasil penghalusan *Rietveld* pada keramik MZT02-2 dengan waktu tahan sinter 4 jam (GoF = 1,836 %, R_p = 13,18 %, R_{wp} = 20,68 %, R_{exp} = 15,26 %).

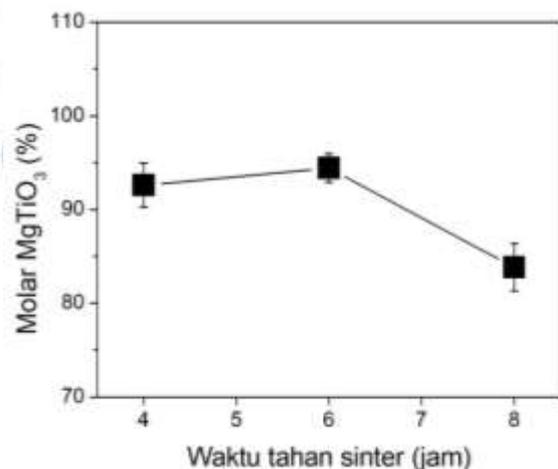


Gambar 8. Hasil penghalusan *Rietveld* pada keramik MZT02-2 dengan waktu tahan sinter 6 jam (GoF = 1,865 %, R_p = 12,88 %, R_{wp} = 20,93 %, R_{exp} = 15,33 %).



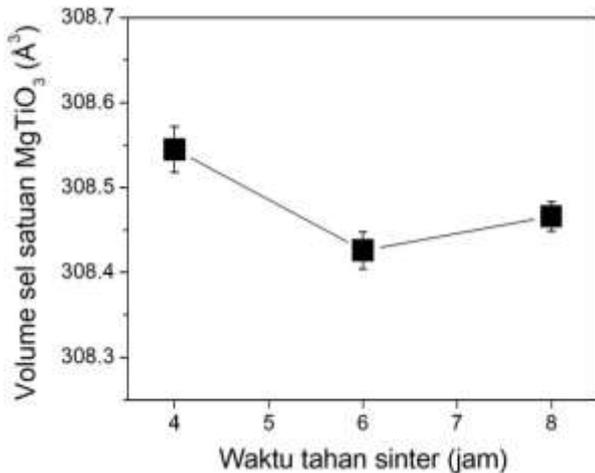
Gambar 9. Hasil penghalusan *Rietveld* pada keramik MZT02-2 dengan waktu tahan sinter 8 jam (GoF = 3,665 %, R_p = 20,16 %, R_{wp} = 29,84 %, R_{exp} = 15,59 %).

Arti dari semua simbol pada Gambar 7, 8 dan 9 adalah sama seperti arti simbol pada Gambar 5. Berdasarkan output/hasil penghalusan *Rietveld*, didapatkan data komposisi fasa berupa % molar, volume sel satuan dan parameter kisi $MgTiO_3$ dari keramik MZT02-2. Data % molar keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam ditunjukkan pada Gambar 10.



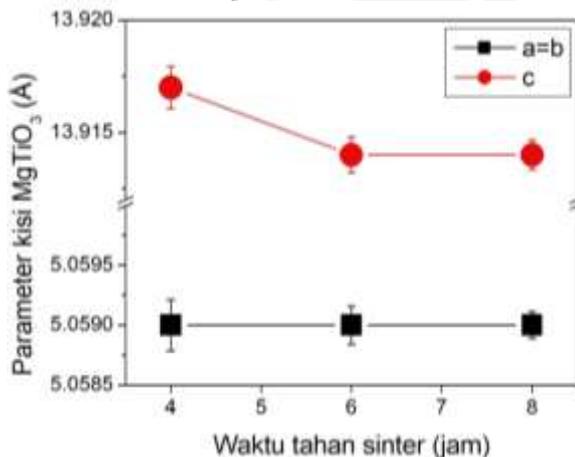
Gambar 10. Grafik % molar $MgTiO_3$ keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam.

Berdasarkan Gambar 10, nilai % molar $MgTiO_3$ meningkat dari waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam dan mengalami penurunan pada waktu tahan sinter 8 jam (pembahasan tentang penurunan % molar ini diberikan pada sub B). Selanjutnya, volume sel satuan keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam ditunjukkan pada Gambar 11.



Gambar 11. Grafik volume sel satuan $MgTiO_3$ keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam.

Berdasarkan Gambar 11, diperoleh fakta bahwa nilai volume sel satuan mengalami penurunan dari waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam, dan mengalami peningkatan pada waktu tahan 8 jam (pembahasan tentang penurunan dan peningkatan nilai volume sel satuan diberikan pada sub B). Gambar 12 berikut menunjukkan grafik data parameter kisi keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan sinter 4, 6 dan 8 jam.



Gambar 12. Grafik parameter kisi $MgTiO_3$ keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam.

Seperti yang terlihat pada Gambar 12, nilai parameter kisi a=b dan c memiliki nilai yang berbeda-beda setiap variasi waktu tahan sinter. Perbedaan nilai parameter kisi tersebut sangat kecil, sehingga tidak terlihat jelas perbedaan nilai parameter kisi a=b pada Gambar 12. Oleh karena itu, berikut ini ditunjukkan output *Rietica* untuk nilai parameter kisi $MgTiO_3$ pada keramik MZT02-2 setiap variasi waktu tahan sinter (Gambar 13).

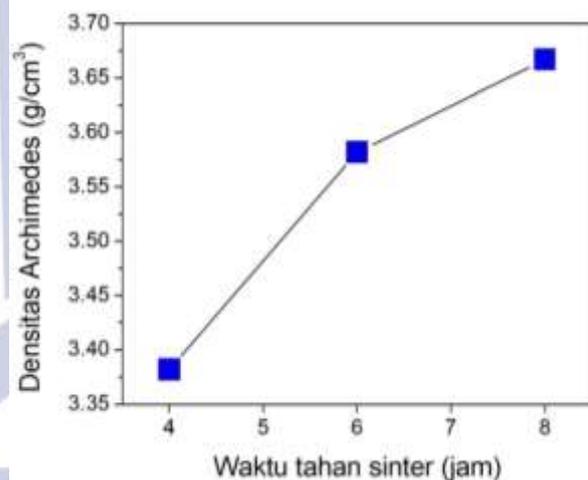
Waktu tahan sinter (jam)	a (Å)	b (Å)	c (Å)	Angka kesimpulannya
4 jam	5.059695	5.059695	13.916783	0.000134, 0.000212, 0.000439, 0.000929
6 jam	5.059210	5.059210	13.914133	0.000033, 0.000159, 0.000096, 0.000789
8 jam	5.059481	5.059480	13.914431	0.000009, 0.000111, -0.000017, 0.000666

Gambar 13. Output *Rietica* nilai parameter kisi $MgTiO_3$.

Berdasarkan Gambar 13, diperoleh fakta bahwa nilai parameter kisi a=b dan c mengalami penurunan dari waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam, sedangkan masing-masing nilai parameter kisi tersebut mengalami peningkatan pada waktu tahan sinter 8 jam (pembahasan tentang penurunan dan peningkatan nilai parameter kisi a=b dan c diberikan pada sub B).

3. Karakterisasi Densitas Keramik MZT02-2

Gambar 14 berikut menunjukkan hasil densitas Archimedes pada keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan sinter 4, 6 dan 8 jam.

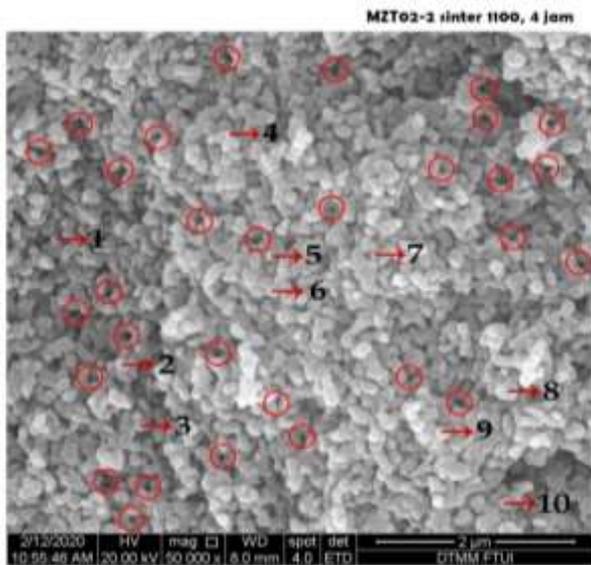


Gambar 14. Densitas Archimedes keramik MZT02-2 dengan variasi waktu tahan 4, 6 dan 8 jam.

Berdasarkan Gambar 14, nilai densitas Archimedes meningkat seiring bertambahnya waktu tahan sinter, yaitu dari 3,382 menjadi 3,582 dan 3,667 g/cm^3 untuk waktu tahan sinter 4, 6 dan 8 jam. Pembahasan tentang meningkatnya nilai densitas Archimedes diberikan pada sub B.

4. Karakterisasi Mikrostruktur Keramik MZT02-2

Gambar 15 menunjukkan data mikrostruktur hasil uji FESEM pada keramik MZT02-2, 4 jam. Data mikrostruktur untuk keramik MZT02-2, 6 dan 8 jam belum tersedia hingga artikel ini selesai ditulis karena lab uji FESEM harus *lockdown* akibat pandemi Covid-19 sehingga pembahasan lebih lanjut untuk hasil mikrostruktur belum dapat dilakukan secara maksimal.



Gambar 15. Hasil uji FESEM untuk keramik MZT02-2, 4 jam. Butir yang ditunjukkan oleh tanda panah dan angka 1-10 = ke-10 butir yang menjadi sampel untuk diukur diameternya, lingkaran berwarna merah menunjukkan pori-pori yang juga diukur diameternya, keduanya menggunakan *software ImageJ*.

Hasil pengukuran diameter rata-rata butir dan pori-pori pada Gambar 15 menggunakan *software ImageJ* tersebut ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Hasil pengukuran diameter rata-rata butir dan pori-pori.

Diameter rata-rata butir 1-10 (nm)	Diameter rata-rata semua pori-pori (nm)
113	67

B. Pembahasan

1. Struktur Serbuk Kristalin MZT02

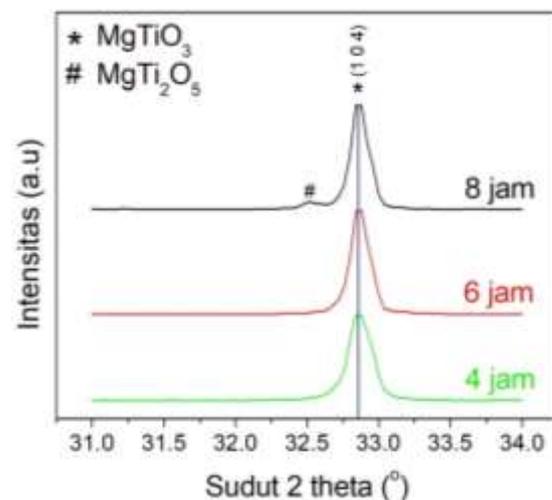
Seperti terlihat pada Gambar 4, serbuk MZT02 ternyata telah menghasilkan fasa yang dikehendaki yaitu $MgTiO_3$ dengan sedikit fasa impuritas TiO_2 *rutile*. Tidak terdapatnya *peak* yang mengandung Zn menunjukkan bahwa doping Zn sebesar 0,2 mol pada Mg telah mampu menghasilkan larutan padat substitusi MZT02.

2. Struktur Keramik MZT02-2

Berdasarkan Gambar 6, keramik MZT02-2 juga mengandung fasa $MgTiO_3$ yang hampir tunggal. Hal ini ditandai dengan terkandungnya (92–95) % molar $MgTiO_3$ pada keramik MZT02-2, 4 dan 6 jam (lihat Gambar 10), sehingga keramik MZT02-2 memang mengandung fasa yang diharapkan. Hal menarik yang perlu dicermati adalah pada keramik dengan waktu tahan sinter 8 jam terdeteksi sedikit fasa sekunder $MgTi_2O_5$, yaitu 7,72 % molar. Fasa $MgTi_2O_5$ berasal dari reaksi kimia antara $MgTiO_3 + TiO_2 \rightarrow MgTi_2O_5$ (Adikaning & Suasmoro, 2016). Pembentukan fasa sekunder $MgTi_2O_5$ tersebut mungkin dipicu akibat perpanjangan waktu tahan sinter keramik MZT02-2 dari 4 dan 6 jam menjadi 8 jam. Akibat terdeteksinya fasa sekunder tersebut menyebabkan % molar fasa $MgTiO_3$ menjadi berkurang jika dibandingkan dengan % molar $MgTiO_3$ pada keramik dengan waktu tahan sinter 4 dan 6 jam (lihat

Gambar 10). Sehingga dapat dikatakan bahwa penggunaan waktu tahan sinter selama 8 jam tidak efektif digunakan pada fabrikasi keramik MZT02-2.

Berdasarkan Gambar 11 dan 12, nilai parameter kisi baik $a=b$ maupun c dan nilai volume sel satuan mengalami penurunan dari waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam, dan mengalami peningkatan pada waktu tahan sinter 8 jam. Hal ini menunjukkan bahwa waktu tahan sinter mempengaruhi nilai parameter kisi dan volume sel satuan. Untuk membahas pengaruh waktu tahan sinter terhadap perubahan nilai parameter kisi, maka dibutuhkan analisis terhadap kemungkinan terjadinya pergeseran posisi 2θ dari puncak difraksi tertinggi milik fasa $MgTiO_3$, yaitu puncak (104) pada posisi $2\theta = 31-34^\circ$ seperti pada Gambar 16.



Gambar 16. Puncak tertinggi fasa $MgTiO_3$ (104) pada posisi $2\theta = 31-34^\circ$ milik ke-3 keramik MZT02-2 pada Gambar 6.

Seperti terlihat pada Gambar 16, secara sepintas ketiga posisi 2θ puncak tertinggi (104) tersebut tidak mengalami pergeseran sama sekali. Namun apabila dianalisis secara lebih mendetil, diperoleh data bahwa posisi puncak (104) milik keramik MZT02-2, 4 jam terletak pada $2\theta = 31,84^\circ$, sedangkan puncak yang sama pada keramik dengan waktu tahan sinter 6 dan 8 jam terletak pada posisi $2\theta = 32,88^\circ$. Artinya bahwa memang telah terjadi pergeseran posisi puncak (104) menuju ke arah sudut 2θ yang lebih besar, meskipun pergeseran tersebut sangat kecil. Apabila fakta terjadinya pergeseran ke-3 puncak (104) tersebut dikaitkan dengan ke-3 data parameter kisi pada Gambar 12 dan 13 di atas, serta dikaitkan dengan hubungan antara jarak antar bidang kristal (d_{hkl}) dengan parameter kisi (a dan c) untuk sistem kristal tetragonal milik fasa $MgTiO_3$ pada Pers. (1) dan Hukum Bragg pada Pers. (2) berikut ini,

$$\frac{1}{(d_{hkl})^2} = \frac{h^2 + k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (1)$$

$$2d \sin \theta = n \lambda \quad (2)$$

Keterangan:

d = jarak antar bidang kristal pada fasa $MgTiO_3$

h, k, l = indeks Miller $MgTiO_3$

a, c = parameter kisi $MgTiO_3$

θ = sudut difraksi

n = orde difraksi

λ = panjang gelombang (Handoko dkk, 2008).

Maka berdasarkan Pers.(1), pada waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam dengan nilai a dan c berkurang, akan berakibat berkurangnya nilai d_{hkl} . Selanjutnya, apabila d_{hkl} yang berkurang tersebut dimasukkan ke Pers. (2), menyebabkan nilai $\sin\theta$ bertambah besar mengingat d_{hkl} berbanding terbalik dengan $\sin\theta$. Analisis ini ternyata sesuai dengan perolehan pada Gambar 16, yaitu telah terjadi pergeseran posisi 2θ ke arah kanan pada puncak (104) milik keramik dari waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam, yaitu dari $2\theta = 31,84$ menjadi $32,88^\circ$, seperti telah disebutkan di atas.

Selanjutnya, pada waktu tahan sinter 6 jam ke 8 jam dengan nilai a dan c bertambah akan berakibat bertambahnya pula nilai d_{hkl} . Apabila d_{hkl} yang bertambah tersebut dimasukkan ke Pers. (2), maka nilai $\sin\theta$ berkurang, sehingga telah terjadi pergeseran posisi 2θ ke arah kiri pada puncak (104). Namun, bertambahnya nilai parameter kisi yang sangat kecil seperti yang terlihat pada Gambar 13 menyebabkan pergeseran posisi 2θ ke arah kiri juga sangat kecil hingga seolah-olah tidak terjadi pergeseran puncak (104) pada Gambar 16. Oleh karena itu, puncak (104) milik keramik dari waktu tahan sinter 6 jam ke 8 jam tetap berada pada posisi sudut $2\theta = 32,88^\circ$.

3. Densitas keramik MZT02-2

Berdasarkan Gambar 14, densitas Archimedes keramik MZT02-2 meningkat seiring bertambahnya waktu tahan sinter. Hal ini disebabkan karena bertambahnya waktu tahan sinter menyebabkan butir-butir akan mengalami pergerakan yang lebih besar. Butir-butir yang bergerak tersebut akan saling mendekati satu sama lain, sehingga porositas semakin berkurang. Porositas yang semakin berkurang menunjukkan bahwa jarak antar butir menjadi semakin rapat dan densitas yang diperoleh menjadi semakin tinggi (Masrukan & Mujinem, 2016). Apabila hasil uji densitas tersebut dikaitkan dengan hasil uji mikrostruktur FESEM pada Gambar 15, diperoleh fakta bahwa sinter keramik MZT02-2 pada suhu 1100 C, 4 jam telah menghasilkan keramik dengan butir berorde nano. Dengan kata lain, keramik MZT02-2 berstruktur nano dapat diperoleh pada penelitian ini.

PENUTUP

A. Simpulan

Waktu tahan sinter dapat mempengaruhi struktur keramik MZT02-2. Bertambahnya waktu tahan sinter menyebabkan nilai parameter kisi dan volume sel satuan berkurang. Selain itu, % molar MgTiO₃ bertambah dari keramik dengan waktu tahan sinter 4 jam ke 6 jam. Selanjutnya, % molar MgTiO₃ berkurang pada waktu tahan sinter 8 jam karena munculnya fasa sekunder MgTi₂O₅. Oleh karena itu, keramik MZT02-2 dengan waktu tahan sinter 4 dan 6 jam lebih direkomendasikan sebagai kandidat bahan dielektrik yang baik daripada waktu tahan 8 jam.

Waktu tahan sinter juga mempengaruhi densitas Archimedes keramik MZT02-2. Bertambahnya waktu tahan sinter menyebabkan densitas Archimedes keramik meningkat. Berdasarkan hasil uji mikrostruktur keramik dengan waktu tahan sinter 4 jam, diperoleh fakta bahwa butiran-butiran pada keramik tersebut masih berukuran nano (belum membesar) sehingga keramik tersebut sangat menguntungkan untuk diaplikasikan sebagai bahan dielektrik. Sedangkan apabila keramik dengan waktu tahan sinter 6 jam diperkuat oleh hasil uji mikrostruktur (ukuran butir yang masih berukuran nano), maka keramik tersebut juga sangat menguntungkan untuk diaplikasikan sebagai bahan dielektrik.

B. Saran

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut dengan melakukan karakterisasi mikrostruktur (uji FESEM) keramik MZT02-2 pada semua variasi waktu tahan sinter. Hal ini dimaksudkan agar dapat data pertumbuhan butir sebagai fungsi dari waktu tahan sinter.

DAFTAR PUSTAKA

- Adikaning, Sefrilita., & Suasmoro, D. (2016). $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ Ceramics Synthesize as Dielectric Material by Attritor Mill Mixing Methods.
- Baek, J. G., Isobe, T., & Senna, M. (1996). Mechanochemical Effects on the Precursor Formation and Microwave Dielectric Characteristics of MgTiO₃. *Solid State Ionics*, 90(1-4), 269-279. [https://doi.org/10.1016/s01672738\(96\)00387-6](https://doi.org/10.1016/s01672738(96)00387-6).
- Chiang, Y-M. (1997). *Physical Ceramics: Principles for Ceramic Science and Engineering*. New York: Canada John Willey & Sons, Inc, Toronto.
- Ermawati, Frida U., Pratapa, S., Suasmoro, S., Hübert, T., & Banach, U. (2016). Preparation and Structural Study of $Mg_{1-x}Zn_xTiO_3$ Ceramics and their Dielectric Properties from 1 Hz to 7.7 GHz. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 27(7), 6637-6645. <https://doi.org/10.1007/s10854-016-4610-6>.
- Ermawati, Frida U. (2017). *Fisika Bahan Keramik*. Surabaya: Unipress Surabaya.
- Ermawati, Frida U., and S. Suasmoro. (2017). Dilatometric Shrinkage Study on Magnesium Titanate-based Ceramic Systems. *Journal of Physics: Conference Series*, 997, 012005.
- Ermawati, Frida Ulfah, Suasmoro, S., & Pratapa, S. (2015). A Simple Dissolved Metals Mixing Route to Prepare Nanostructured $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ Solid Solution. *Advanced Materials Research*, 1112, 47-52.
- Ermawati, Frida U. (2018). *Difraksi Sinar-X*. Surabaya: Teori dan Analisis Data Eksperimen: Unipress Surabaya.
- Ermawati, Frida U. (2019). *Struktur Kristal Bahan Keramik*: Unipress Surabaya.
- Handoko, E., Soegijono, B., & Tama, F. R. (2008). *Teknik Difraksi Sinar-X Dalam Analisis Struktur Kristal Bambang Soegijono*.
- Kang, H., Wang, L., Xue, D., Li, K., & Liu, C. (2008). Synthesis of Tetragonal Flake-like Magnesium

- Titanate Nanocrystallites. *Journal of Alloys and Compounds*, 460(1–2), 160–163.
- Liu, X., Zou, B., Xing, H., & Huang, C. (2019). The Preparation of ZrO₂-Al₂O₃ Composite Ceramic by SLA-3D Printing and Sintering Processing. *Ceramics International*, August, 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.09.054>.
- Masrukan, & Mujinem. (2016). *Pengaruh Proses Sintering Terhadap Perubahan*. 22(1), 25–34.
- Pratapa, Suminar dan Angela, Rian. (2012). Sintesis MgTiO₃ dengan Variasi Temperatur Kalsinasi Menggunakan Metode Pencampuran Larutan. *Jurnal Sains dan Seni ITS*, 1(1), ISSN: 2301- 928X.
- Saukani, M., & Suasmoro, S. (2015). Characterization of Mg_{0.8}Zn_{0.2}TiO₃ Prepared via Liquid Phase Sintering. *Advanced Materials Research*, 1112(April), 11–14. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/amr.1112.11>.
- Sreedhar, K., Pavvarska. (2002). Synthesis of MgTiO₃ and Mg₄Nb₂O₉ using Stochiometrically Excess MgO. *Mater..Lett*, 53, 452.
- Sun, Y., Cai, D., Yang, Z., Li, H., & Liao, X. (2018). Effect of Holding Time on Microstructure , Mechanical , Water Resistance and Dielectric Properties of α -cordierite Glass-ceramic Coating on Porous BN / Si₂N₂O Ceramic. *Ceramics International*, 2, 0–1. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.05.251>.
- Surendran, K. P., Wu, A., Vilarinho, P. M., & Ferreira, V. M. (2008). Sol - Gel Synthesis of Low-Loss MgTiO₃ Thin Films by a Non-Methoxyethanol Route. *10*, 4260–4267.
- Wang, X., Zhou, D., & Xu, P. (2019). The WC-Co / Fe–Ni Interface: Effect of Holding Time on the Microstructure , Grain Size and Grain Growth Mechanism. *Ceramics International*, 45(17), 23320–23327. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.08.031>.
- W.D. Kingery, H.K. Bowen and D.R. Uhlmann. (1976). *Introduction to Ceramics*, 2nd edn. (Wiley-Interscience, New York) p. 452.
- Wu, S., Wei, X., Wang, X., Yang, H., & Gao, S. (2010). Effect of Bi₂O₃ Additive on the Microstructure and Dielectric Properties of BaTiO₃-Based Ceramics Sintered at Lower Temperature. *Journal of Materials Science & Technology*, 26(5), 472–476. [https://doi.org/10.1016/s1005-0302\(10\)60075-8](https://doi.org/10.1016/s1005-0302(10)60075-8).
- Zhang, J., Yue, Z., Luo, Y., & Li, L. (2018). MgTiO₃/TiO₂/MgTiO₃: An Ultrahigh-Q and Temperature-stable Microwave Dielectric Ceramic Through Cofired Trilayer Architecture. *Ceramics International*, 44(17), 21000–21003. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.08.135>.