

Jurnal Inovasi Fisika Indonesia (IFI) Volume 13 Nomor 2 Tahun 2024, hal 110-118

PENGARUH VARIASI WAKTU TAHAN SINTER TERHADAP STRUKTUR KERAMIK $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ SERTA KORELASINYA DENGAN ANALISIS ELEMENTAL

¹⁾Alya P. Nabilla, ²⁾*Frida U. Ermawati

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

*The Corresponding Author, Email: frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

$MgTiO_3$ merupakan material fungsional untuk diaplikasikan dalam berbagai sistem telekomunikasi. Identifikasi fasa $MgTiO_3$ dapat dilakukan, diantaranya menggunakan uji *X-Ray Diffraction* (XRD) maupun *Energy Dispersive X-Ray* (EDX). Terkait hal tersebut, makalah ini bertujuan untuk melaporkan hasil pengujian struktur dan analisis elemental pada keramik $MgTiO_3$ dengan dopan Cr sebanyak 4% mol yaitu $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ (disingkat MTC004) melalui data XRD dan EDX akibat dari pengaruh variasi waktu tahan sinter. Dopan Cr ditambahkan bertujuan untuk mencegah terdeteksinya fasa yang tidak diinginkan ($MgTi_2O_5$ atau Mg_2TiO_4). Serbuk MTC004 disintesis menggunakan metode pencampuran larutan antara larutan $MgCl_2$, $0,96TiCl_4$, dan $0,04CrCl_4$, selanjutnya dikalsinasi pada suhu $800\text{ }^\circ\text{C}$ selama 4 jam. Kemudian, serbuk kristalin dikompaksi menggunakan *hydraulic-hand-press* pada tekanan 10 MPa dan *uniaxial-cylindrical-die-press* berdiameter 8 mm hingga menghasilkan pelet. Pelet tersebut disinter pada suhu $1300\text{ }^\circ\text{C}$ dengan variasi waktu tahan 2, 3, dan 4 jam. Data struktur menunjukkan fasa utama adalah $MgTiO_3$ (75,06 – 85,40 % molar) disertai fasa *impurity* $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ (dapat diindeks TiO_2), dan MgO (khusus untuk 3 jam) tanpa adanya puncak yang mengandung Cr sehingga mengindikasikan terbentuknya larutan padat. Bertambahnya waktu tahan sinter meningkatkan % molar, densitas, parameter kisi, dan volume sel satuan fasa $MgTiO_3$. Data EDX yang diperoleh dari 3 titik berbeda tiap variasi waktu tahan sinter menunjukkan bahwa ketiga keramik hanya mengandung unsur Mg, Ti, Cr, dan O dengan rasio %atom antara $Mg:(Ti_{0,96}+Cr_{0,04}):O$ mendekati rasio stoikiometri ideal $MgTiO_3$ yaitu 1:1:3. Sebagai contoh untuk waktu tahan 2 jam, rasio = 20,293:(20,864+0,854):57,989, dimana %atom $Ti_{0,96}+Cr_{0,04}$ lebih banyak 1,425% dari rasio idealnya. Kelebihan %atom tersebut menunjukkan keramik 2 jam ini mengandung fasa lain selain $MgTiO_3$ yaitu $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ (dapat diindeks TiO_2). Dengan demikian, data XRD dan EDX tersebut saling mendukung satu sama lain.

Kata Kunci: keramik $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$, waktu tahan sinter, *X-Ray Diffraction* (XRD), *Energy Dispersive X-Ray* (EDX).

Abstract

$MgTiO_3$ is a functional material for application in various telecommunications systems. Identification of the $MgTiO_3$ phase can be done, including using *X-Ray Diffraction* (XRD) and *Energy Dispersive X-Ray* (EDX) tests. In this regard, this paper aims to report the results of structural testing and elemental analysis on $MgTiO_3$ ceramics with a Cr dopant of 4 mol%, namely $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ (abbreviated as MTC004) through XRD and EDX data due to the influence of variations. sintering time. The Cr dopant is added to prevent the detection of unwanted phases ($MgTi_2O_5$ or Mg_2TiO_4). MTC004 powder was synthesized using a solution mixing method between $MgCl_2$, $0.96TiCl_4$ and $0.04CrCl_4$ solutions, then calcined at $800\text{ }^\circ\text{C}$ for 4 hours. Then, the crystalline powder was compacted using a *hydraulic-hand-press* at a pressure of 10 MPa and a *uniaxial-cylindrical-die-press* with a diameter of 8 mm to produce pellets. The pellets were sintered at a temperature of $1300\text{ }^\circ\text{C}$ with varying holding times of 2, 3 and 4 hours. Structural data shows that the main phase is $MgTiO_3$ (75.06 – 85.40 % molar) accompanied by impurity phases $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ (can be indexed as TiO_2), and MgO (specifically for 3 hours) without any peaks containing Cr, thus indicating the formation solid solution. Increasing the sintering holding time increases the molar%, density, lattice parameters, and unit cell volume of the $MgTiO_3$ phase. EDX data obtained from 3 different points at each sintering time variation shows that the three ceramics only contain the elements Mg, Ti, Cr, and O with the atomic % ratio of $Mg:(Ti_{0,96}+Cr_{0,04}):O$ approaching the ideal stoichiometric ratio. $MgTiO_3$ is 1:1:3. For example, for a holding time of 2 hours, the ratio = 20.293:(20.864+0.854):57.989, where the % of $Ti_{0,96}+Cr_{0,04}$ atoms is 1.425% more than the ideal ratio. This

excess of atomic percentages shows that this 2 hours ceramic contains other phases besides $MgTiO_3$, namely $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ (can be indexed as TiO_2). Thus, the XRD and EDX data support each other.

Keywords: $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ ceramics, sinter resistance time, X-Ray Diffraction (XRD), Energy Dispersive X-Ray (EDX).

I. PENDAHULUAN

Magnesium Titanate ($MgTiO_3$) merupakan material dielektrik yang banyak digunakan dalam sistem komunikasi pada frekuensi gelombang mikro, seperti antena, filter, dan radar [1]–[3]. Fabrikasi keramik dielektrik berbasis $MgTiO_3$ telah berkembang pesat dengan menciptakan berbagai komposisi dan desain dengan tujuan untuk mendapatkan karakteristik dielektrik unggul yang dapat memenuhi kebutuhan industri [4]–[6]. Berdasarkan uraian tersebut, keberadaan $MgTiO_3$ sebagai fasa utama sangatlah penting untuk memastikan keunggulan tersebut [7].

Guna menghadirkan $MgTiO_3$ sebagai fasa utama, beberapa peneliti telah mengadopsi metode sintesis yang mampu menghasilkan fasa dominan $MgTiO_3$ pada suhu kalsinasi rendah ($<1000\text{ }^\circ\text{C}$) tanpa hadirnya fasa intermediat ($MgTi_2O_5$ atau Mg_2TiO_4), yaitu metode pencampuran larutan. Referensi [8], [9] melaporkan hadirnya fasa intermediat yang menyertai pembentukan fasa utama $MgTiO_3$ berpotensi mengurangi sifat dielektrik dan memperlambat proses penyusutan keramik sehingga fasa intermediat dikatakan sebagai fasa detrimental (merugikan) [8], [9]. Beberapa peneliti yang telah melaporkan sintesis $MgTiO_3$ dengan metode pencampuran larutan, yaitu: *Pertama*, Referensi [10] melakukan penambahan ion Sn^{4+} sebagai dopan ion Ti^{4+} pada sistem $Mg(Ti_{0,95}Sn_{0,05})O_3$ menghasilkan $MgTiO_3$ disertai fasa TiO_2 pada suhu kalsinasi $800\text{ }^\circ\text{C}$. *Kedua*, Referensi [11] menggunakan bahan awal berupa serbuk Mg dan Ti (*Merck*, $>99\%$) menghasilkan fasa $MgTiO_3$ disertai TiO_2 pada suhu 700 dan $800\text{ }^\circ\text{C}$ namun teidentifikasi ekstra fasa MgO pada suhu $600\text{ }^\circ\text{C}$. *Ketiga*, Referensi [12] melaporkan penambahan ion Zn^{2+} sebagai dopan ion Mg^{2+} pada sistem $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})TiO_3$ menghasilkan $MgTiO_3$ disertai fasa TiO_2 pada suhu kalsinasi $550\text{ }^\circ\text{C}$ dan adanya fasa MgO pada suhu sinter $1000\text{ }^\circ\text{C}$. Secara umum dalam memfabrikasi keramik $MgTiO_3$ sangat sulit mendapatkan fasa tunggal $MgTiO_3$, beberapa pengotor (*impurity*) selalu ada [13]. Fasa *impurity* yang dimaksud berupa TiO_2 dan MgO. Hadirnya fasa *impurity* tersebut disebabkan karena TiO_2 dan MgO belum bereaksi secara sempurna membentuk $MgTiO_3$ [14]. Namun, Referensi [15] mengatakan hadirnya fasa *impurity* tidak selalu berdampak buruk pada suatu sampel dikarenakan nilai *impurity* yang kecil dapat diterima untuk aplikasi elektrokeramik.

Penggunaan ion Zn dan Sn sebagai dopan pada sistem $MgTiO_3$ yang telah disebutkan di atas, dapat dipilih karena beberapa faktor, yaitu bilangan koordinasi dan jumlah elektron valensi yang sama, serta jari-jari ion yang bermiripan (perbedaannya tidak boleh melebihi 15%) sehingga diharapkan ion dopan dapat menempati sebagian *sites* ion *host* dengan tujuan memperoleh larutan padat substitusi [16]. Penambahan ion dopan tersebut bertujuan untuk menghasilkan material dengan sifat yang lebih baik dari material asalnya, seperti terbentuknya fasa pada suhu rendah, menghindari pertumbuhan butir, dan juga menghindari munculnya fasa yang tidak diinginkan. Hal tersebut telah dibuktikan oleh Referensi [7] yang menggunakan Zn^{2+} sebagai dopan ion Mg^{2+} pada sistem $Mg_{1-x}Zn_xTiO_3$ (untuk $x = 0-0,5$) memperoleh hasil bahwa dengan adanya ion dopan tersebut mampu menurunkan suhu kalsinasi dari $700\text{ }^\circ\text{C}$ (tanpa adanya dopan) menjadi $550\text{ }^\circ\text{C}$. Namun, adanya penambahan ion dopan Zn yang berlebih mampu mengurangi nilai permitivitas relatif (ϵ_r) keramik tersebut saat diukur pada frekuensi tinggi ($7,7\text{ GHz}$) yaitu dari $15,0$ menjadi $12,1$. Hal tersebut disebabkan karena jari-jari Zn^{2+} lebih berat dibandingkan Mg^{2+} , yaitu $0,074\text{ nm}$ (untuk Zn^{2+}) dan $0,072\text{ nm}$ (untuk Mg^{2+}) sehingga saat dilakukan pengukuran pada frekuensi tinggi osilasi dipol melambat akibatnya ϵ_r menurun. Kemudian terdapat Referensi [17] yang melaporkan penggunaan Sn^{4+} sebagai dopan ion Ti^{4+} pada sistem $Mg(Ti_{1-x}Sn_x)O_3$ ($x = 0,01-0,09$). Adanya penambahan ion dopan Sn tersebut mampu menghasilkan $MgTiO_3$ sebagai fasa utama, namun saat $x = 0,07-0,09$ terbentuk fasa intermediat berupa $MgTi_2O_5$. Peningkatan nilai densitas dan ϵ_r juga terjadi seiring dengan bertambahnya ion Sn ($x = 0,01-0,05$) dan terjadi penurunan ketika ($x = 0,07-0,09$), yaitu dari $3,750-3,897\text{ gr/cm}^3$ menjadi $\sim 3,850\text{ gr/cm}^3$ (untuk densitas) dan $17,36-17,61$ menjadi $\sim 17,4$ (untuk ϵ_r). Hal tersebut terjadi karena pertumbuhan butir yang tidak homogen dan kehadiran fasa $MgTi_2O_5$ akibat dari penambahan ion dopan Sn yang berlebih.

Berdasarkan uraian di atas, belum ada yang menggunakan ion Cr sebagai dopan untuk memperbaiki sifat dari $MgTiO_3$. Sejauh yang Penulis ketahui masih jarang ditemukannya publikasi yang melaporkan penggunaan dopan ion Cr pada sistem $MgTiO_3$ selain Referensi [18]. Namun, publikasi yang dilaporkan oleh Referensi [18] tersebut sudah lebih dari 2 dekade yang lalu dengan menggunakan metode *chemical route* (metode C) dan *classical mixed oxide route* (metode MO) serta masih teridentifikasi fasa intermediat di dalamnya.

Maka dari itu, pada makalah ini Peneliti melaporkan analisis pembentukan fasa $MgTiO_3$ pada sistem keramik $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ (disingkat MTC004). Keramik MTC004 tersebut disintesis menggunakan metode pencampuran larutan seperti yang telah dilaporkan oleh Referensi [10], [12], [14] dan dikalsinasi pada suhu 800 °C. Kemudian difabrikasi dan disinter menggunakan suhu 1300 °C dengan variasi waktu tahan 2, 3, dan 4 jam. Tujuannya untuk memperoleh $MgTiO_3$ sebagai fasa utama dan mengetahui berapa %atom terkandung dalam unsur-unsur pembentuk fasa $MgTiO_3$ akibat dari pengaruh waktu tahan sinter berdasarkan pengukuran XRD dan EDX.

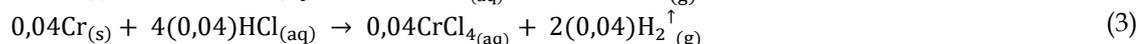
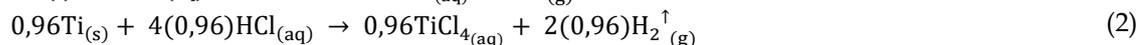
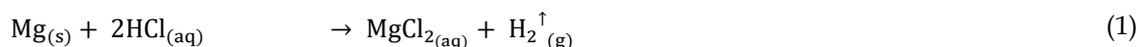
II. METODE

A. Rancangan Penelitian

Penelitian ini dilakukan melalui beberapa tahapan yang meliputi sintesis dan kalsinasi serbuk, fabrikasi keramik (kompaksi dan sinter), hingga karakterisasi serta analisis hasil uji.

1. Sintesis serbuk MTC004

Sintesis serbuk dimulai dengan menimbang bahan awal berupa serbuk logam Mg : (Ti + Cr) dengan perbandingan 1 : (0,96 + 0,04) yang dilarutkan ke dalam HCl 12 M secara terpisah dengan menggunakan *hotplate stirrer* hingga terbentuk larutan homogen seperti pada **Persamaan 1-3**,



Ketiga hasil larutan tersebut dicampur menjadi satu dan diaduk pada suhu ruang hingga homogen, kemudian dipanaskan pada suhu 100-110 °C hingga membentuk *slurry* dan menjadi kerak kering. Kerak kering tersebut dihaluskan sehingga terbentuk serbuk *amorf* MTC004. Selanjutnya, serbuk *amorf* tersebut dikalsinasi pada suhu 800 °C selama 4 jam sehingga terbentuk serbuk kristalin MTC004.

2. Fabrikasi keramik MTC004

Fabrikasi keramik dilakukan dengan menggunakan serbuk kristalin MTC004 yang dikompaksi menggunakan *die press* berbentuk silinder dengan diameter 8 mm dan *hydraulic hand press* (BWS) pada tekanan 10 MPa selama 10 sekon hingga membentuk serbuk kompak (pelet). Pelet tersebut disinter menggunakan suhu 1300 °C dengan variasi waktu tahan 2, 3, dan 4 jam.

3. Karakterisasi

Ketiga keramik tersebut masing-masing dilakukan karakterisasi struktur menggunakan uji *X-Ray Diffraction* (XRD) *PanAnalytical, Type X'pert Pro* dengan $CuK\alpha$, $\lambda = 1.540598 \text{ \AA}$, dan $2\theta = 15 - 70^\circ$, dan *step rate* = 0,023 °/min. Selanjutnya, data hasil XRD dianalisis secara kualitatif dan kuantitatif. Analisis kualitatif dilakukan menggunakan metode *Search and Match* melalui perangkat lunak *Match!* untuk mengidentifikasi fasa-fasa kristalin yang terbentuk dalam keramik. Analisis kuantitatif dilakukan menggunakan metode *Rietveld* dengan program *Rietica* untuk mengetahui komposisi dari fasa-fasa kristalin yang telah teridentifikasi tersebut. Sedangkan uji *Energy Dispersive X-Ray* (EDX) *Type Thermo Scientific Phenom* dilakukan untuk mengetahui unsur-unsur kimia yang terkandung dalam keramik.

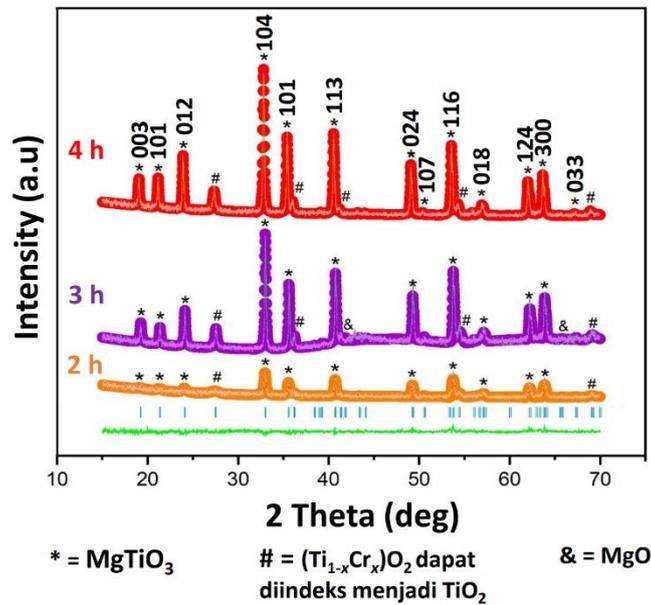
B. Variabel Operasional Penelitian

Variabel kontrol yang digunakan berupa serbuk logam (Mg, Ti, dan Cr), suhu dan waktu tahan kalsinasi (800 °C selama 4 jam), suhu sinter (1300 °C), *furnace*, XRD *PanAnalytical Type X'pert Pro*, dan EDX *Type Thermo Scientific Phenom*. Kemudian variabel manipulasi yang digunakan adalah waktu tahan sinter selama 2, 3, dan 4 jam. Sedangkan variabel respon berupa fasa-fasa yang teridentifikasi, komposisi fasa hasil identifikasi, dan unsur-unsur kimia yang terkandung dalam keramik.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Karakterisasi Struktur Keramik MTC004

Gambar 1 menunjukkan pola XRD beserta hasil identifikasi fasa-fasa yang terbentuk (hasil analisis kualitatif) menggunakan perangkat lunak *Match!* dan hasil *refinement* pola XRD (analisis kuantitatif) menggunakan metode *Rietveld*. Sedangkan, **Tabel 1** merangkum nilai-nilai parameter kesesuaian (*Figures-of-Merit, FoM*) dari proses *refinement* dan output *refinement* pola XRD pada **Gambar 1** berupa data komposisi fasa, yaitu %molar, densitas, parameter kisi, dan volume sel satuan milik semua fasa yang teridentifikasi.



Gambar 1. Pola XRD dan hasil *refinement Rietveld* dari keramik MTC004 pada suhu 1300 °C dengan variasi waktu tahan sinter 2, 3, dan 4 jam. * = $MgTiO_3$ *geikielite*, # = $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ dapat diindeks menjadi TiO_2 , & = MgO *periclase*.

Tabel 1. Output *refinement* untuk ketiga pola XRD pada **Gambar 1**.

Waktu tahan Sinter (Jam)	FoM (%)	Fasa	%Molar	Densitas (gr/cm ³)	Parameter Kisi (x 10 ⁻²) nm	Volume Sel Satuan (x 10 ⁻²) nm ³		
2	R_p	14,27	75,06 ± 2,60	3,76	a=b	50,49 ± 0,00	3065,47 ± 1,73	
	R_{wp}	18,70			c	138,80 ± 0,00		
	R_B ($MgTiO_3$)	8,22						
	R_B (TiO_2)	4,71	$(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ = TiO_2	24,94 ± 1,83	4,26	a=b	45,96 ± 0,00	624,10 ± 0,77
	R_{exp}	15,37				c	29,54 ± 0,00	
	X^2	1,479						
3	R_p	10,25	77,46 ± 1,03	3,81	a=b	50,52 ± 0,00	3070,27 ± 0,35	
	R_{wp}	13,04			c	138,88 ± 0,00		
	R_B ($MgTiO_3$)	5,95						
	R_B (TiO_2)	4,90	$(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ = TiO_2	14,88 ± 0,56	4,25	a=b	45,92 ± 0,00	624,23 ± 0,23
	R_B (MgO)	2,08				c	29,60 ± 0,00	
	R_{exp}	15,37						
X^2	1,737	MgO	7,65 ± 0,21	4,21	a=b=c	39,91 ± 0,00	635,76 ± 0,00	
4	R_p	9,74	85,40 ± 2,70	3,85	a=b	50,55 ± 0,00	3075,03 ± 0,33	
	R_{wp}	13,37			c	138,94 ± 0,00		
	R_B ($MgTiO_3$)	1,43						
	R_B (TiO_2)	1,95	$(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ = TiO_2	14,60 ± 1,13	14,60	a=b	45,95 ± 0,00	625,50 ± 0,22
	R_{exp}	12,09				c	29,59 ± 0,00	
	X^2	1,223						

Berdasarkan **Gambar 1**, ketiga pola XRD pada variasi waktu tahan sinter 2, 3, dan 4 jam menghasilkan fasa yang sama, yaitu fasa utama $MgTiO_3$ (puncak-puncak dengan pola "*", PDF No. 06-0494) dan fasa *impurity* $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ yang dapat diindeks sebagai fasa TiO_2 *rutile* (puncak-puncak dengan pola "#", PDF No. 21-1276). Mengingat fasa *impurity* $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ merupakan fasa yang tidak diinginkan, maka nilai x tidak dapat ditentukan (karena unsur pembangun TiO_2 tidak ditimbang saat proses sintesis). Pembahasan lebih detail mengenai pembentukan unsur $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ tersebut dibahas pada analisis EDX. Kemudian, khusus waktu tahan 3 jam, selain kedua fasa tersebut terdeteksi pula sebuah puncak minor milik fasa MgO (puncak-puncak dengan pola "&", PDF No. 45-0946) pada posisi $2\theta = 42,8^\circ$ dan $64,0^\circ$. Seperti yang telah dijelaskan pada **Sub I**,

adanya fasa *impurity* berupa TiO_2 dan MgO disebabkan karena kedua fasa tersebut belum bereaksi sempurna membentuk $MgTiO_3$ selama proses sinter berlangsung [14], [19]–[21].

Seperti yang telah dilaporkan di atas, hadirnya fasa intermediat yang menyertai fasa utama $MgTiO_3$ merupakan fasa yang merugikan (*detrimental*). Hal tersebut dibuktikan oleh Referensi [8] pada keramik $(Mg_{1-x}Zn_x)TiO_3$ yang disinter pada suhu $1275\text{ }^\circ\text{C}$ selama 3 jam. Fasa $MgTi_2O_5$ muncul pada konsentrasi $x = 0,07$ yang menyebabkan penurunan densitas dan ϵ_r . Selain itu, Referensi [22] juga membuktikan keberadaan fasa intermediat yang menyertai fasa utama $MgTiO_3$ pada sistem $0,95MgTiO_3-0,05CaTiO_3$ yang disinter pada suhu $1200 - 1400\text{ }^\circ\text{C}$ selama 4 jam. Fabrikasi keramik pada penelitian ini menggunakan 2 metode yang berbeda, yaitu *directlly mixing* (MCT1) dan *mixing* (MCT2). Fasa $MgTi_2O_5$ muncul pada MTC2 dan menurunkan nilai ϵ_r , sehingga penggunaan MCT1 mampu menghasilkan ϵ_r yang lebih optimal dibandingkan menggunakan MCT2. Dengan demikian, ketidakhadiran fasa intermediat pada penelitian ini membuktikan bahwa penelitian ini lebih baik dibandingkan dengan penelitian milik Referensi [8], [22] sehingga berpotensi menghasilkan material keramik dengan sifat dielektrik yang baik.

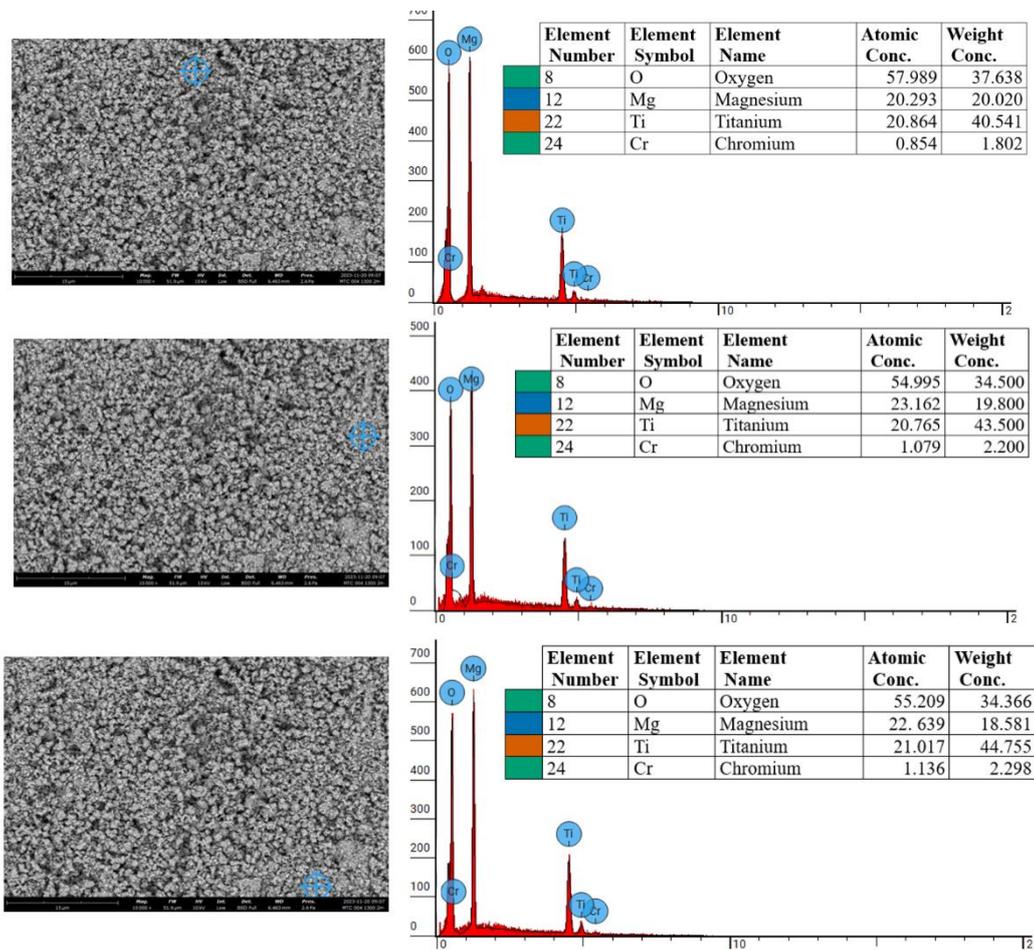
Selanjutnya **Gambar 1** juga memperlihatkan adanya garis berwarna merah, ungu dan orange yang menyatakan pola difraksi terukur (eksperimen), sedangkan garis putih menyatakan pola difraksi terhitung (model). Garis putih tersebut dibuat dengan cara mengumpulkan data-data kristalografi dari semua fasa yang teridentifikasi, yaitu fasa $MgTiO_3$ *geikielite*, TiO_2 *rutile*, dan MgO *periclase*. Data-data tersebut diperoleh dari *Database Powder Diffraction File* (PDF) No. 06-0494 untuk fasa $MgTiO_3$, No. 21-1276 untuk fasa TiO_2 , dan No. 45-0946 untuk fasa MgO , serta dari basis data *Inorganic Crystal Structure Database* (ICSD), No. 657954 untuk fasa $MgTiO_3$, No. 64987 untuk fasa TiO_2 , dan No. 9863 untuk fasa MgO . Kemudian, garis biru mewakili puncak Bragg terkait dengan ketiga fasa yang teridentifikasi, sedangkan garis hijau menyatakan selisih tinggi intensitas antara pola terukur dengan terhitung. Seperti terlihat pada **Gambar 1**, garis hijau tersebut berbentuk garis horizontal dengan perbedaan puncak (*less peaks*) pada beberapa posisi 2θ yang menunjukkan proses *refinement* tersebut berhasil, ditandai dengan hampir tidak adanya perbedaan tinggi intensitas antara pola terukur dan terhitung.

Berdasarkan **Tabel 1**, data-data parameter kesesuaian untuk *profile residual* (R_p), *weighted profile residual* (R_{wp}), dan *expected residual* (R_{exp}) menunjukkan nilai di bawah 19%. *Bragg residual* (R_B) menunjukkan nilai di bawah 9%, sedangkan *chi squared* (χ^2) menunjukkan nilai di bawah 2%. Hasil *refinement* tersebut sesuai dengan Referensi [23], [24] yang melaporkan bahwa parameter-parameter dapat diterima apabila nilai R_p dan R_{wp} kurang dari 20%, R_B kurang dari 10%, dan nilai χ^2 kurang dari 4%. Dengan demikian, output analisis dari *refinement* dengan *Rietveld* pada **Tabel 1** berhasil dilakukan dan dapat digunakan analisis lebih lanjut.

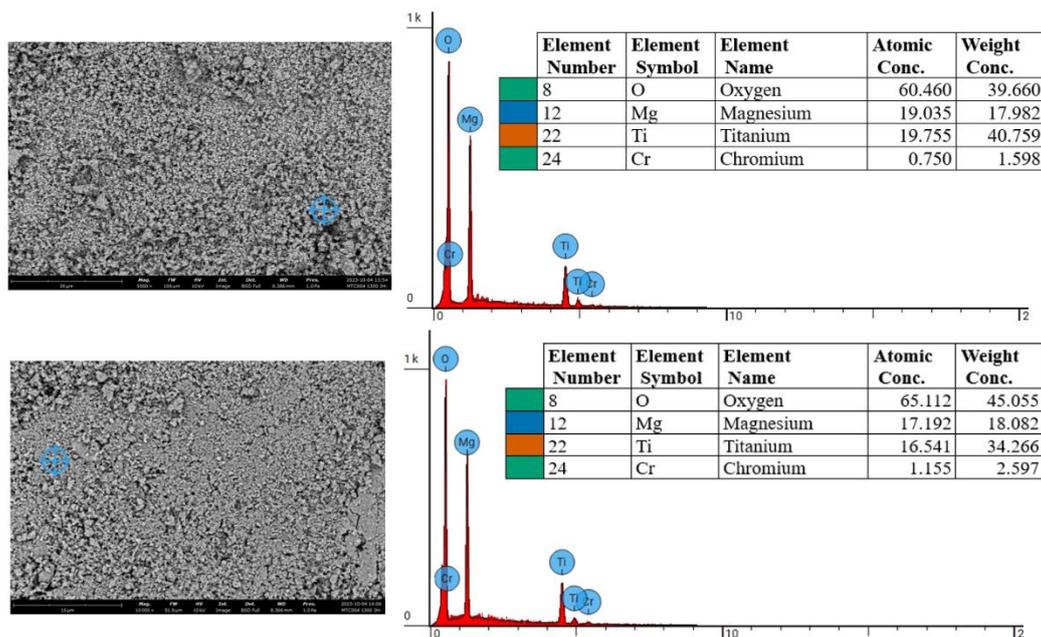
Selain itu, %molar fasa $MgTiO_3$ mengalami kenaikan seiring dengan meningkatnya waktu tahan sinter, yakni 77,06% (pada waktu tahan 2 jam), selanjutnya menjadi 77,46% (pada waktu tahan 3 jam), dan 85,40% (pada waktu tahan 4 jam). Sedangkan pada TiO_2 data parameter %molar mengalami penurunan seiring dengan meningkatnya waktu tahan sinter, 24,94% (pada waktu tahan 2 jam), selanjutnya menjadi 14,88% (pada waktu tahan 3 jam), dan 14,60% (pada waktu tahan 4 jam). Namun, pada waktu tahan 3 jam muncul fasa *impuritas* berupa MgO . Kemudian, nilai densitas dari fasa $MgTiO_3$ juga mengalami kenaikan seiring dengan bertambahnya waktu tahan, yaitu dari $3,76\text{ gr/cm}^3$, menjadi $3,81\text{ gr/cm}^3$, dan $3,85\text{ gr/cm}^3$. Selanjutnya untuk data volume sel satuan dan parameter kisi. Data volume sel satuan dari fasa $MgTiO_3$ mengalami kenaikan seiring dengan meningkatnya waktu tahan sinter dari $3064,47 \times 10^{-2}\text{ nm}$ (2 jam) menjadi $3070,27 \times 10^{-2}\text{ nm}$ (3 jam) menjadi $3075,03 \times 10^{-2}\text{ nm}$ (4 jam). Untuk data parameter kisi menghasilkan pola yang sama dengan pola parameter kisi fasa $MgTiO_3$ ($a=b, c$). Namun terjadi perbedaan nilai parameter kisi $a=b$ dan c setiap variasi waktu tahan sinter yang tidak terlalu signifikan satu sama lain ($a=b=50,49; c=138,80$) $\times 10^{-2}\text{ nm}^3$ (2 jam), ($a=b=50,52; c=138,88$) $\times 10^{-2}\text{ nm}^3$ (3 jam), dan ($a=b=50,55; c=138,94$) $\times 10^{-2}\text{ nm}^3$ (4 jam). Terjadinya perubahan terhadap data volume sel satuan dan parameter kisi tersebut menunjukkan terbentuknya larutan padat substitusi pada keramik $Mg(Ti_{0,96}Cr_{0,04})O_3$ sebagai akibat dari penggunaan dopan ion Cr^{4+} terhadap Ti^{4+} [25]. Kenaikan volume sel satuan tersebut dikarenakan jari-jari ion dopan dan ion *host* bermiripan (tidak lebih dari 15%), yaitu $0,055\text{ nm}$ (untuk Cr^{4+}) dan $0,061\text{ nm}$ (untuk Ti^{4+}) [16]. Selain itu, hasil pola XRD menunjukkan tidak ada *peak* yang mengandung Cr (lihat kembali **Gambar 2**) yang mengindikasikan bahwa Cr telah masuk ke dalam *sites* Ti pada struktur $MgTiO_3$.

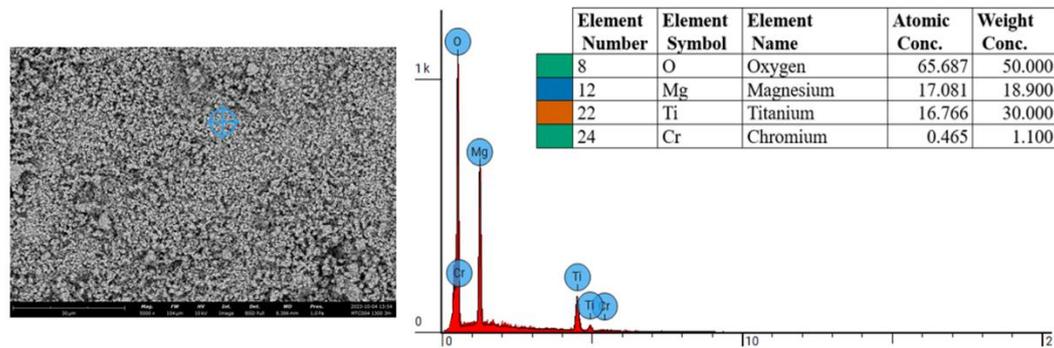
B. Analisis EDX

Gambar 4-6 menunjukkan hasil analisis uji EDX terhadap unsur-unsur yang terkandung di dalam keramik MTC004 $1300\text{ }^\circ\text{C}$ dengan variasi waktu tahan sinter.

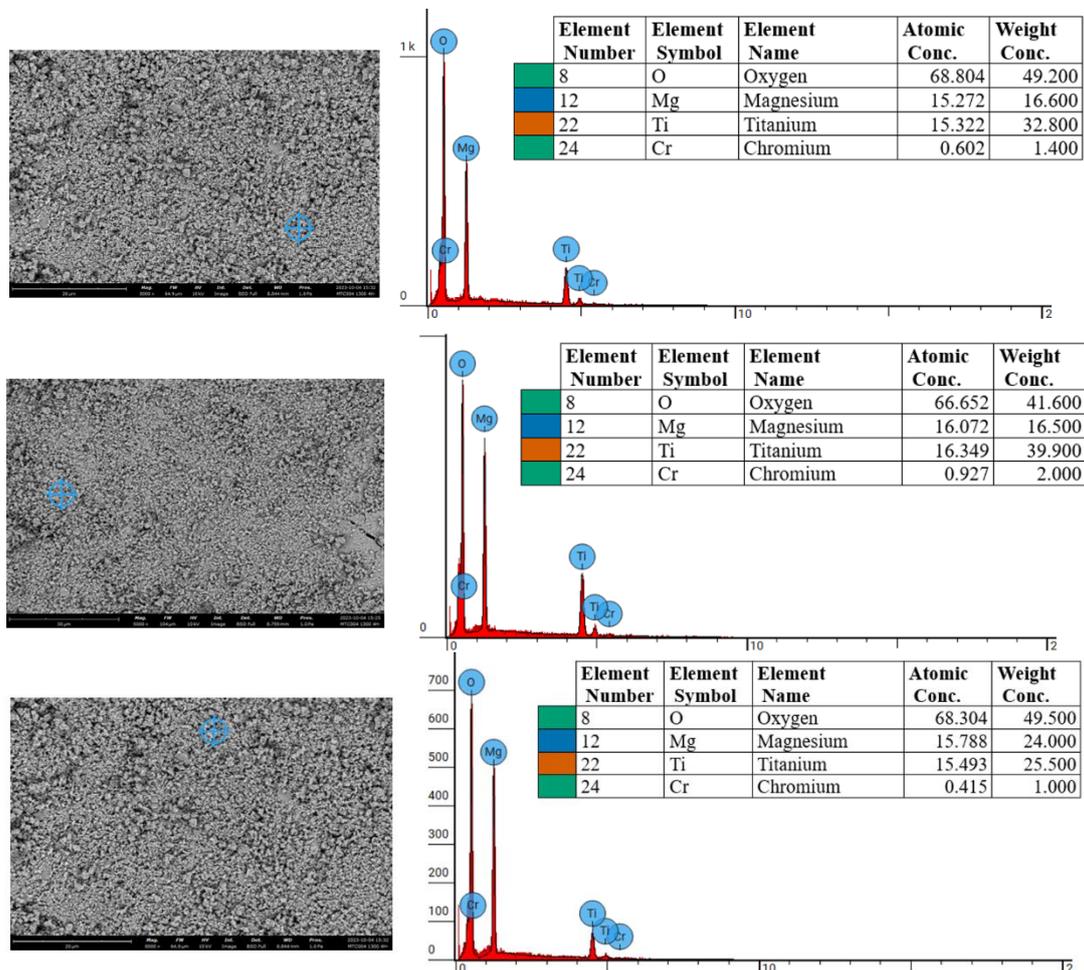


Gambar 4. Analisa unsur EDX keramik MTC004 untuk waktu tahan 2 jam.





Gambar 5. Analisa unsur EDX keramik MTC004 untuk waktu tahan 3 jam.



Gambar 6. Analisa unsur EDX keramik MTC004 untuk waktu tahan 4 jam.

Berdasarkan Gambar 4-6, uji EDX yang telah dilakukan dengan bervariasi waktu tahan sinter (2, 3 dan 4 jam) tersebut mengandung unsur-unsur yang menjadi bahan awalnya saja, yaitu O, Mg, Ti, dan Cr. Selain itu, pengukuran tersebut dilakukan pada 3 titik yang berbeda (lingkaran berwarna biru). Data %berat dan %atom beserta spektrum tiap unsur juga ditampilkan. Data %atom tiap unsur yang dihasilkan memiliki nilai yang berbeda-beda. Dengan mengambil data %atom salah satu titik pada Gambar 4 dapat ditemukan rasionya sebesar:

$$Mg : (Ti_{0,96}Cr_{0,04}) : O = 20,293 : (20,864 + 0,854) : 57,989 = 20,293 : 21,718 : 57,989 \quad (1)$$

$$\text{Rasio \%atom yang ideal} = 20,293 : 20,293 : 57,989 \quad (2)$$

Dengan membandingkan Persamaan 1 dan 2, terlihat %atom milik $Ti_{0,96}+Cr_{0,04}$ pada Persamaan 1 lebih banyak 1,425% dari rasio idealnya. Kelebihan %atom tersebut dapat dikatakan bahwa pada keramik dengan waktu tahan 2 jam ini mengandung fasa lain selain $MgTiO_3$. Seperti halnya yang dimaksud adalah $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$

atau dapat diindeks sebagai TiO_2 rutile. Dengan analisa yang sama, pada **Gambar 5** dapat ditemukan rasionya sebesar:

$$Mg : (Ti_{0,96}Cr_{0,04}) : O = 19,035 : (19,775 + 0,750) : 60,460 = 19,035 : 20,505 : 60,460 \quad (3)$$

$$\text{Rasio \%atom yang ideal} = 19,035 : 19,035 : 60,460 \quad (4)$$

Berdasarkan data %atom pada **Persamaan 3** dan **4**, terlihat %atom dari $Ti_{0,96}+Cr_{0,04}$ pada **Persamaan 3** lebih banyak 1,47% dari rasio idealnya. Kelebihan %atom tersebut menunjukkan bahwa pada keramik dengan waktu tahan 3 jam mengandung fasa lain selain $MgTiO_3$. Seperti halnya yang dimaksud adalah $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ atau dapat diindeks sebagai TiO_2 rutile dan MgO . Dengan analisa yang sama, pada **Gambar 6** dapat ditemukan rasionya sebesar:

$$Mg : (Ti_{0,96}Cr_{0,04}) : O = 16,072 : (16,349 + 0,927) : 66,652 = 16,072 : 17,276 : 66,652 \quad (5)$$

$$\text{Rasio \%atom yang ideal} = 16,072 : 16,072 : 66,652 \quad (6)$$

Hal sama juga terjadi pada **Persamaan 5**, %atom milik $Ti_{0,96}+Cr_{0,04}$ lebih banyak sebanyak 1,204% dibandingkan dengan **Persamaan 6**. Kelebihan %atom tersebut menunjukkan bahwa pada keramik dengan waktu tahan 4 jam juga terkandung fasa lain selain $MgTiO_3$, yaitu $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ (dapat diindeks sebagai TiO_2 rutile).

Berdasarkan hal tersebut, hipotesis untuk **Persamaan 1, 3, dan 5** di atas selaras dengan data struktur (pada **Tabel 1** dan **Gambar 1**), dimana dari ketiga sampel keramik teridentifikasi fasa lain selain $MgTiO_3$. Meskipun demikian, perbandingan nilai %atom antara $Mg:(Ti_{0,96}+Cr_{0,04}):O$ dari ketiga sampel keramik tersebut mendekati rasio stoikiometri $MgTiO_3$ yaitu 1:1:3.

IV. PENUTUP

A. Simpulan

Fabrikasi keramik MTC004 menggunakan suhu 1300 °C dengan variasi waktu tahan sinter 2, 3, dan 4 jam telah berhasil dilakukan. Kemudian, serangkaian analisa pembentukan fasa $MgTiO_3$ pada keramik tersebut akibat dari variasi waktu tahan menggunakan uji XRD dan EDX juga telah selesai dilakukan. Kedua data tersebut saling mendukung yaitu fasa $MgTiO_3$ terbentuk sebagai fasa utama disertai dengan fasa $(Ti_{1-x}Cr_x)O_2$ atau dapat diindeks sebagai TiO_2 rutile dan MgO (khusus 3 jam). Bertambahnya waktu tahan sinter meningkatkan %molar, densitas, parameter kisi, dan volume sel satuan fasa $MgTiO_3$. Data EDX dari ketiga sampel keramik tersebut selaras dengan data struktur, dimana dari ketiga sampel keramik teridentifikasi fasa lain selain $MgTiO_3$ dengan rasio %atom antara $Mg:(Ti_{0,96}+Cr_{0,04}):O$ mendekati rasio stoikiometri ideal $MgTiO_3$ yaitu 1:1:3.

B. Saran

Perlu dilakukannya fabrikasi keramik MTC004 dengan menggunakan lebih banyak variasi waktu tahan sinter guna memperoleh hasil yang lebih komprehensif.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] M. K. Suresh *et al.*, "Synthesis of Nanocrystalline Magnesium Titanate by an Auto-Igniting Combustion Technique and its Structural, Spectroscopic and Dielectric Properties," *Mater. Res. Bull.*, vol. 45, no. 7, pp. 761–765, 2010, doi: 10.1016/j.materresbull.2010.03.019.
- [2] T. Santhosh Kumar, P. Gogoi, A. Perumal, P. Sharma, and D. Pamu, "Effect of Cobalt Doping on the Structural, Microstructure and Microwave Dielectric Properties of $MgTiO_3$ Ceramics Prepared by Semi Alkoxide Precursor Method," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 97, no. 4, pp. 1054–1059, 2014, doi: 10.1111/jace.12851.
- [3] U. Ullah, W. F. F. W. Ali, M. F. Ain, N. M. Mahyuddin, and Z. A. Ahmad, "Design of a Novel Dielectric Resonator Antenna Using $MgTiO_3$ - $CoTiO_3$ for Wideband Applications," *Mater. Des.*, vol. 85, pp. 396–403, 2015, doi: 10.1016/j.matdes.2015.07.026.
- [4] T. Yue, L. Li, M. Du, and Y. Zhan, "Multilayer Co-Fired Microwave Dielectric Ceramics in $MgTiO_3$ - Li_2TiO_3 System with Linear Temperature Coefficient of Resonant Frequency," *Scr. Mater.*, vol. 205, p. 114185, 2021, doi: 10.1016/j.scriptamat.2021.114185.
- [5] H. Sun, Y. Qi, and J. Zhang, "Surface Organic Modified Magnesium Titanate Particles with Three Coupling Agents: Characterizations, Properties and Potential Application Areas," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 520, no. April, p. 146322, 2020, doi: 10.1016/j.apsusc.2020.146322.

- [6] A. M. Muammar and F. U. Ermawati, "Characterization of $(Mg_{0,5}Zn_{0,5})TiO_3$ Ceramics As Material Candidates for Dielectric Resonator at Microwave Frequency," vol. 5, no. 2, pp. 71–85, 2022, doi: <https://doi.org/10.29303/ip.r.v5i2.142>.
- [7] F. U. Ermawati, S. Pratapa, S. Suasromo, T. Hübert, and U. Banach, "Preparation and Structural Study of $Mg_{1-x}Zn_xTiO_3$ Ceramics and Their Dielectric Properties From 1 Hz to 7.7 GHz," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 27, no. 7, pp. 6637–6645, 2016, doi: 10.1007/s10854-016-4610-6.
- [8] P. Gogoi, L. R. Singh, and D. Pamu, "Characterization of Zn Doped $MgTiO_3$ Ceramics: an Approach for RF Capacitor Applications," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 28, no. 16, pp. 11712–11721, 2017, doi: 10.1007/s10854-017-6975-6.
- [9] F. U. Ermawati and S. Suasromo, "Dilatometric Shrinkage Study on Magnesium Titanate-Based Ceramic Systems," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 997, no. 1, 2018, doi: 10.1088/1742-6596/997/1/012005.
- [10] F. Z. Fardhany and F. U. Ermawati, "Microstrain Pada Serbuk $Mg(Ti_{0,95}Sn_{0,05})O_3$ Hasil Sintesis Dengan Metode Pencampuran Larutan Akibat Variasi Waktu Tahan Kalsinasi," vol. 12, pp. 10–19, 2023, doi: 10.26740/ifi.v12n3.p10-19.
- [11] S. Pratapa, M. A. Baqiya, Istianah, R. Lestari, and R. Angela, "A Simple Dissolved Metals Mixing Method to Produce High-Purity $MgTiO_3$ Nanocrystals," *AIP Conf. Proc.*, vol. 1586, pp. 39–42, 2014, doi: 10.1063/1.4866726.
- [12] D. Nisa and F. U. Ermawati, "Fabrikasi Keramik $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})TiO_3+x$ wt.% Bi_2O_3 Hasil Sintesis Dengan Metode Pencampuran Larutan Dan Pengaruh Variasi x wt.% Bi_2O_3 Terhadap Struktur Dan Densitas Keramik," vol. 09, pp. 15–20, 2020, doi: <https://doi.org/10.26740/ifi.v9n2.p15-20>.
- [13] S. K. Estreicher, "Defect theory: Elusive State-of-the-Art," *Mater. Today*, vol. 6, no. 6, pp. 26–35, 2003, doi: 10.1016/S1369-7021(03)00631-X.
- [14] S. Prapta and R. Angela, "Sintesis $MgTiO_3$ Dengan Variasi Temperatur Kalsinasi Menggunakan Metode Pencampuran Larutan," vol. 1, no. 1, pp. 73–75, 2012, doi: 10.12962/j23373520.v1i1.565.
- [15] G. Pfaff, "Peroxide Route for Synthesis of Magnesium Titanate Powders of Various Compositions," *Ceram. Int.*, vol. 20, no. 2, pp. 111–116, 1994, doi: 10.1016/0272-8842(94)90067-1.
- [16] F. U. Ermawati, Y. Taryana, N. Sudrajat, and W. A. Adi, "Fabrication and Characterization Resonator in Dielectric Resonator Oscillator Module," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 1553, pp. 1–18, 2023, doi: 10.1007/s10854-023-10890-0.
- [17] Z. Gong, Z. Wang, L. Wang, Z. Fu, W. Han, and Q. Zhang, "Microwave Dielectric Properties of High-Q $Mg(Sn_xTi_{1-x})O_3$ Ceramics," *Electron. Mater. Lett.*, vol. 9, no. 3, pp. 331–335, 2013, doi: 10.1007/s13391-013-2214-3.
- [18] V. M. Ferreira, F. Azough, R. Freer, and J. L. Baptista, "The Effect of Cr and La on $MgTiO_3$ and $MgTiO_3$ - $CaTiO_3$ Microwave Dielectric Ceramics," *Science (80-)*, vol. 235, no. 4784, p. 9, 1997, doi: 10.1126/science.235.4784.9.
- [19] N. N. Firdausi and F. U. Ermawati, "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 $MgTiO_3$," *J. Inov. Fis. Indones.*, vol. 08, pp. 30–33, 2019, doi: 10.26740/ifi.v8n3.p%25p.
- [20] D. I. Yulianti and F. U. Ermawati, "Analisis Struktur Dan Mikrostruktur Fasa Tunggal $(Mg_{0,9}Zn_{0,1})TiO_3/Bi_2O_3$," *Inov. Fis. Indones.*, vol. 8 Nomor 02, no. 2302–4313, pp. 17–22, 2019, doi: 10.26740/ifi.v8n2.p%25p.
- [21] M. D. Z. Abror and F. U. Ermawati, "Analisis Rietveld Pola XRD Serbuk $Mg(Ti_{0,98}Sn_{0,02})O_3$ Hasil Sintesis Dengan Metode Pencampuran Larutan," vol. 12, pp. 26–34, 2023, doi: 10.26740/ifi.v12n3.p26-34.
- [22] K. Wang, H. Zhou, W. Sun, X. Chen, and H. Ruan, "Solid-State Reaction Mechanism and Microwave Dielectric Properties of $0.95MgTiO_3$ - $0.05CaTiO_3$ Ceramics," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 29, no. 3, pp. 2001–2006, 2018, doi: 10.1007/s10854-017-8111-z.
- [23] H. M. Rietveld, "A Profile Refinement Method for Nuclear and Magnetic Structures," *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 2, no. 2, pp. 65–71, 1969, doi: 10.1107/s0021889869006558.
- [24] B. H. Toby, "R Factors in Rietveld Analysis: How Good is Good Enough?," *Powder Diff.*, vol. 21, no. 1, pp. 67–70, 2006, doi: 10.1154/1.2179804.
- [25] S. Abdillah and Suasromo, "Electrical Characterization of $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ Doped by V_2O_5 Using Variation of Sintering Time at $1100^\circ C$," pp. 6–7, 2015, doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.1112.11.