

ANALISIS XRD DAN EDX TERHADAP KEBERADAAN FASA-FASA PADA KERAMIK $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$ DENGAN DAN TANPA PENAMBAHAN V_2O_5

¹Maulidiya Fadilatul Latifa, ²Frida Ulfah Ermawati

¹Prodi Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Surabaya, Email: maulidiyafadilatul.21004@mhs.unesa.ac.id

² Prodi Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Surabaya, Email: frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

Keramik dielektrik merupakan material penting untuk aplikasi telekomunikasi pada gelombang mikro. MgTiO_3 menjadi salah satu material dielektrik yang berpotensi untuk aplikasi tersebut. Agar mendapatkan sifat material yang lebih baik dibandingkan dengan sifat material aslinya, maka salah satu cara yang dapat dilakukan ketika fabrikasi keramik dielektrik adalah dengan menambahkan dopan berupa ion atau *liquid additive agent* (LAA) yang memenuhi syarat tertentu. Makalah ini bertujuan untuk melaporkan analisis pembentukan fasa-fasa yang terbentuk pada keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$ (disingkat MZT02) dengan dan tanpa penambahan 4 %wt. V_2O_5 sebagai LAA berdasarkan uji XRD dan EDX. Serbuk MZT02 disintesis dengan metode *liquid mixing*, dikalsinasi pada suhu 500 °C selama 5 jam. Sebagian serbuk kristalin MZT02 ditambah 4 %wt. V_2O_5 menggunakan *planetary ballmill*. Serbuk kristalin dengan dan tanpa V_2O_5 dikompaksi secara konvensional pada tekanan 8 MPa selama 10 detik menjadi pelet silinder pejal berdiameter 8 mm. Sinter dilakukan pada suhu 1100 °C selama 4 jam sebelum dikarakterisasi. Analisis XRD menunjukkan fasa utama MgTiO_3 disertai dengan fasa intermediat Mg_2TiO_4 pada kedua keramik uji tersebut. Pada keramik MZT02+ V_2O_5 , %molar fasa MgTiO_3 meningkat sedangkan fasa Mg_2TiO_4 turun dibandingkan dengan %molar pada keramik MZT02. Data parameter kisi dan volume sel satuan naik pada keramik MZT02+ V_2O_5 . Analisis EDX mendeteksi unsur-unsur bahan awal yang digunakan yaitu Mg, Ti, Zn, dan O pada kedua keramik uji dengan rasio mendekati rasio unsur-unsur pada fasa MgTiO_3 dan Mg_2TiO_4 . Dengan demikian, analisis fasa-fasa pada keramik uji berdasarkan uji XRD dan EDX saling mendukung satu sama lain.

Kata Kunci: keramik MZT02; V_2O_5 ; XRD; EDX; fasa teridentifikasi

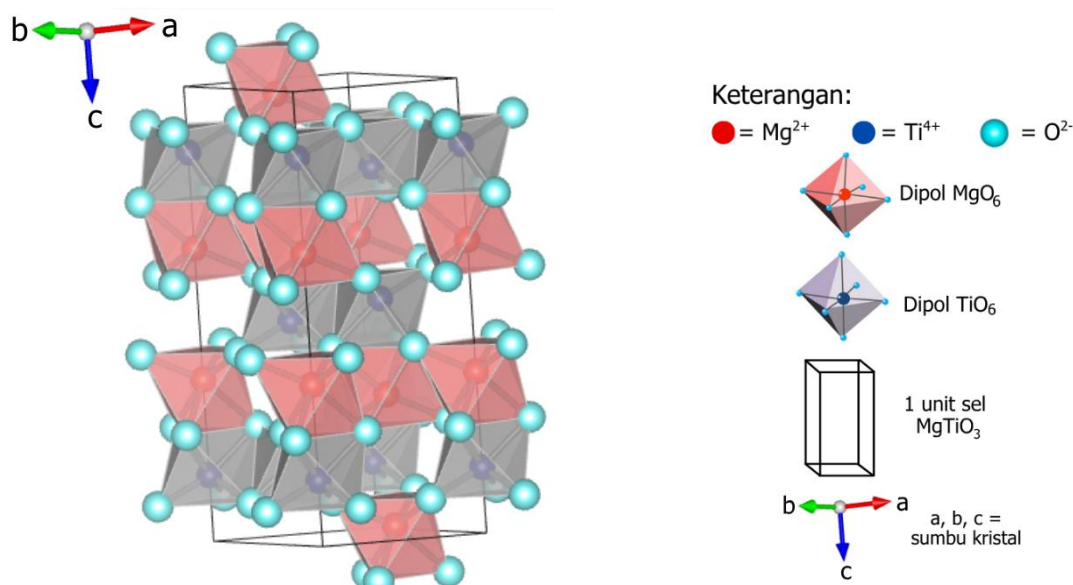
Abstract

Dielectric ceramics are important materials for telecommunication applications in microwaves. MgTiO_3 is one of the dielectric materials that has the potential for these applications. In order to obtain better material properties compared to the original material properties, one method that can be done when fabricating dielectric ceramics is by adding dopants in the form of ions or liquid additive agents (LAA) that meet certain requirements. This study focused on analyzing the phase formation in $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$ ceramics (referred to as MZT02) both without and with the addition of 4 wt.% V_2O_5 as a LAA based on XRD and EDX tests. MZT02 powder was synthesized by the liquid mixing method, calcined at 500 °C for 5 hours. Part of the crystalline MZT02 powder was added with 4 wt.% V_2O_5 using a planetary ball mill. Crystalline powders with and without V_2O_5 were conventionally compacted at 8 MPa for 10 seconds into 8 mm solid cylindrical pellets. Prior to characterization, the pellets were sintered at 1100 °C for 4h. XRD confirmed that MgTiO_3 was the primary phase, with Mg_2TiO_4 appearing as a secondary phase in both ceramic samples. In MZT02+ V_2O_5 ceramics, the molar % of MgTiO_3 phase increased while the molar % of Mg_2TiO_4 phase decreased compared to the molar % of MZT02 ceramics. Lattice parameter data and unit cell volume increased in MZT02+ V_2O_5 ceramics. EDX analysis detected the elements of the starting materials used, namely Mg, Ti, Zn, and O in both test ceramics with a ratio close to the elemental ratios of MgTiO_3 and Mg_2TiO_4 phases. Thus, the phase analysis in the test ceramics based on XRD and EDX tests supports each other.

Keywords: MZT02 ceramic; V_2O_5 ; XRD; EDX; identified phase

I. PENDAHULUAN

Keramik dielektrik merupakan material penting untuk aplikasi telekomunikasi pada gelombang mikro seperti substrat, kapasitor, resonator, dan filter [1], [2]. Hal ini disebabkan keramik dielektrik memiliki sifat dielektrik berupa nilai $Q \times f$ yang tinggi ($> 100.000 \text{ GHz}$; $Q = \frac{1}{\tan \delta}$) dan nilai koefisien temperatur τ_f yang mendekati nol [2]. Berdasarkan pernyataan tersebut, *magnesium titanate* (MgTiO_3) menjadi salah satu material yang memenuhi syarat sebagai material dielektrik karena memiliki nilai $Q \times f$ tinggi yaitu $(9-16) \times 10^{13} \text{ GHz}$ pada frekuensi 10 GHz , nilai τ_f mendekati nol yakni $(-40) - (-6) \text{ ppm/}^\circ\text{C}$, dan permitivitas relatif (ϵ_r) = $17 - 20$ [3], [4]. Selain itu, material ini juga memiliki struktur kristal ilmenite rhombohedral yang membentuk susunan *honeycomb lattice* dengan rumus kimia ABO_3 [5]. **Gambar 1** menunjukkan struktur kristal MgTiO_3 .



Gambar 1. Ilustrasi struktur kristal MgTiO_3 dimana dalam 1 unit sel terdiri dari dipol MgO_6 dan TiO_6 membentuk bangun oktahedral[6]

Berdasarkan gambar di atas, sel satuan MgTiO_3 tersusun atas dipol-dipol MgO_6 dan TiO_6 yang masing-masing memiliki enam ikatan koordinasi yaitu $\text{Mg}-\text{O}$ dan $\text{Ti}-\text{O}$ [6]. Dipol-dipol listrik terbentuk secara permanen pada sel satuan MgTiO_3 karena muatan dari struktur kristal MgTiO_3 terpolarisasi secara alami. Fabrikasi keramik berbasis MgTiO_3 dapat dilakukan dengan doping ion pada kation-kationnya yaitu kation Mg^{2+} atau Ti^{4+} . Upaya tersebut dilakukan untuk mengoptimalkan karakteristik material agar melebihi karakteristik material aslinya. Ion dapat digunakan sebagai dopan pada ion *host* jika keduanya memiliki kesamaan dalam bilangan koordinasi, jumlah elektron valensi, dan jari-jari ion yang mirip dengan selisih tidak melebihi 15% [4]. Doping ion pada keramik MgTiO_3 telah dilaporkan oleh [7]. Pada penelitiannya, ion Li^+ didopan pada ion Mg^{2+} dalam sistem keramik $(\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x)\text{TiO}_3$ ($x = 0; 0,01; 0,05; 0,1 \text{ % mol}$), dikalsinasi pada suhu 800°C selama 3 jam. Keempat keramik uji teridentifikasi fasa MgTiO_3 disertai dengan fasa intermediat yaitu MgTi_2O_5 dan TiO_2 . Penelitian lain yaitu [4] melaporkan penambahan ion Zn^{2+} dan Sn^{4+} pada ion Mg^{2+} dan Ti^{4+} pada sistem keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$. Sinter dilakukan pada suhu 1100°C dengan waktu tahan bervariasi yakni 4, 6, 8, dan 10 jam menghasilkan fasa utama MgTiO_3 (PDF No. 06-0494). Pada variasi waktu tahan 10 jam, teridentifikasi puncak minor yakni TiO_2 *rutile* (PDF No. 21-1276), dan puncak minor MgO *periclas* (PDF No. 45-0946) teridentifikasi ketika ditahan pada 6, 8, dan 10 jam.

Selain ion, fabrikasi keramik MgTiO_3 juga dapat dilakukan dengan doping *liquid additive agent* (LAA). *Liquid additive agent* (LAA) merupakan agen fasa cair yang ditambahkan pada suatu material guna untuk meningkatkan sifat-sifat material tersebut. Ketika proses sinter suatu material berlangsung, bahan LAA akan berubah menjadi fasa cair saat mencapai titik lelehnya. Dengan adanya fasa cair tersebut, pori-pori di sekitar

butir akan terisi sehingga dapat mempercepat proses pemadatan dan menurunkan suhu sinter [8], [9]. Selain itu, penambahan fase cair juga dimungkinkan dapat meningkatkan densitas dengan menurunkan jumlah energi yang dibutuhkan atom untuk berdifusi [10]. Beberapa peneliti telah membuktikan bahwa dopan LAA pada suatu material keramik dapat menurunkan suhu sinter. Referensi [11] melaporkan fabrikasi *glass-ceramics* $\text{CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2 + x \text{ \%mol CaF}_2$ ($x = 0 - 16 \text{ \%mol}$) dengan metode peleburan dan pendinginan konvensional disinter pada rentang suhu $750 - 850^\circ\text{C}$ selama 30 menit. Penelitian tersebut melaporkan bahwa doping CaF_2 pada CBS *glass-ceramics* dapat menurunkan suhu sinter hingga $< 800^\circ\text{C}$. Selain itu, [12] juga melaporkan fabrikasi keramik $\text{MgNb}_2\text{O}_6 + x \text{ \%wt. LiF}$ ($x = 0 - 0,4 \text{ \%wt.}$) dengan metode *solid-state* disinter mulai suhu $1090 - 1250^\circ\text{C}$. Suhu sinter mengalami penurunan hingga mencapai suhu 1100°C seiring dengan meningkatnya variasi LiF pada keramik tersebut.

Fabrikasi keramik MgTiO_3 yang didopan dengan ion dan LAA telah dilaporkan oleh beberapa peneliti. Referensi [13] melaporkan fabrikasi keramik dengan bahan awal MgO , TiO_2 , dan B_2O_3 pada sistem $\text{MgTiO}_3 + x \text{ \%wt. B}_2\text{O}_3$ ($x = 0 - 4 \text{ \%wt.}$) menggunakan suhu sinter 1400°C selama 3 jam. Kelima keramik uji teridentifikasi fasa utama MgTiO_3 , akan tetapi pada kandungan $x = 0, 1, 3, 4 \text{ \%wt.}$ memunculkan fasa minor Mg_2TiO_4 dan CaTiO_3 . Referensi [14] melaporkan fabrikasi keramik dengan variasi dopan pada keramik MgTiO_3 , $\text{Mg}(\text{Ti}_{1-x}\text{Sn}_x)\text{O}_3$, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x)(\text{Ti}_{1-x}\text{Sn}_x)\text{O}_3$, dan $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{Ti}_{1-x}\text{Sn}_x)\text{O}_3$ ($x = 0,05$) yang didoping $4 \text{ \%wt. LiF}$ disinter pada suhu $875 - 1025^\circ\text{C}$ selama 6 jam. Karakterisasi XRD menunjukkan terbentuknya fasa utama MgTiO_3 (PDF No. 79-0831) dan fasa intermediat Mg_2TiO_4 (PDF No. 74-2258) pada semua variasi dopan tersebut. Selain itu, fabrikasi keramik $\text{MgTiO}_3\text{-CaTiO}_3 + 0,5 \text{ \%wt. V}_2\text{O}_5$ dan $x \text{ \%wt. CeO}_2$ ($x = 0; 0,5; 0,75; \text{ dan } 1 \text{ \%wt.}$) menggunakan metode *solid-state* telah dilaporkan oleh [15]. Sampel uji disinter pada rentang suhu $1260 - 1320^\circ\text{C}$ selama 2 jam. Teridentifikasi fasa utama MgTiO_3 (PDF#06-0494), fasa minor CaTiO_3 (PDF#22-0153) dan fasa intermediat MgTi_2O_5 pada suhu sinter 1300°C . Fasa MgTi_2O_5 berkurang seiring dengan peningkatan fraksi LAA yang menunjukkan bahwa doping $\text{V}_2\text{O}_5\text{-CeO}_2$ efektif dalam menghambat pembentukan fasa intermediat. Berdasarkan [13], [14], dan [15], kehadiran fasa utama MgTiO_3 seringkali disertai dengan keberadaan fasa intermediat pada keramik uji.

Mengacu pada penelitian yang dilakukan oleh [15], doping LAA berupa V_2O_5 dan CeO_2 ternyata mampu menghambat pembentukan fasa intermediat seiring dengan meningkatnya variasi fraksi LAA tersebut. Namun, pada penelitian tersebut masih ditemukan penggunaan suhu sinter yang tinggi. Penggunaan suhu sinter yang tinggi berpotensi menyebabkan terbentuknya fasa-fasa yang tidak diharapkan, seperti yang telah dilaporkan oleh [13], [14], dan [15]. Oleh karena itu, pada makalah ini penulis melaporkan analisis pembentukan fasa-fasa pada keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3 + x \text{ \%wt. V}_2\text{O}_5$ ($x = 0 \text{ dan } 4 \text{ \%wt.}$) dengan suhu sinter lebih rendah dibandingkan suhu sinter dari [15], yaitu 1100°C selama 4 jam. Makalah ini bertujuan untuk melaporkan analisis fasa-fasa yang terbentuk pada keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$ (disingkat MZT02) baik dengan ($x = 4 \text{ \%wt.}$) maupun tanpa ($x = 0$) penambahan V_2O_5 berdasarkan uji XRD dan EDX. Dengan demikian, kebaruan (*novelty*) dari makalah ini adalah menganalisis pembentukan fasa-fasa pada keramik MZT02 baik dengan maupun tanpa penambahan V_2O_5 tersebut.

II. METODE

Serbuk MZT02 disintesis menggunakan metode *liquid mixing* dari serbuk logam dengan merk Sigma Aldrich berupa Mg , Zn , dan Ti , serta HCl $12 \text{ \%molar}$ sebagai pelarut. Masing-masing serbuk ditimbang sesuai dengan stokiometri kemudian dilarutkan dengan HCl $12 \text{ \%molar}$. Ketiga larutan yang diperoleh tersebut dicampur kemudian dipanaskan menggunakan *hot magnetic stirrer* hingga menghasilkan endapan kering. Endapan kering dihaluskan sehingga menghasilkan serbuk amorf MZT02. Proses kalsinasi dilakukan pada suhu 500°C dengan waktu tahan 5 jam. Setelah proses kalsinasi, diperoleh serbuk kristalin MZT02, kemudian ditambahkan dengan $4 \text{ \%wt. V}_2\text{O}_5$ dan dimilling dengan alat *planetary ball mill* menggunakan *zirconia balls*. Dari proses tersebut, dihasilkan serbuk kristalin MZT02 dengan $4 \text{ \%wt. V}_2\text{O}_5$ dan MZT02 tanpa V_2O_5 yang digunakan sebagai pembanding.

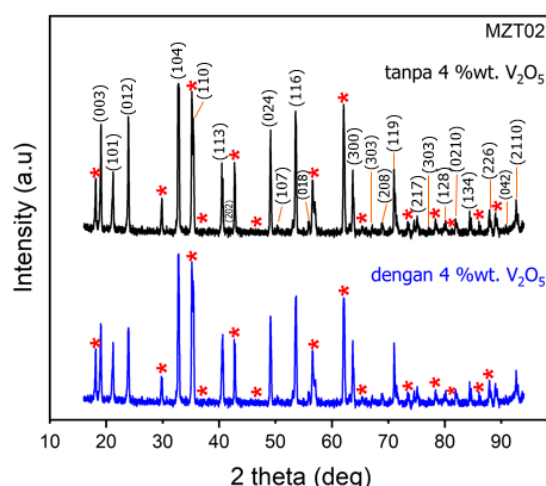
Kompaksi serbuk kristalin dilakukan menggunakan alat berupa *die press* berdiameter 8 mm dan *hydraulic-hand-press* (tekanan 8 MPa selama 10 detik), dihasilkan serbuk kompak (pelet). Selanjutnya, sinter

dilakukan pada suhu 1100 °C selama 4 jam sehingga menghasilkan keramik untuk dikarakterisasi. Kedua keramik dikarakterisasi secara struktural melalui uji XRD menggunakan alat "PANalytical X'pert Pro" dengan radiasi Cu-K α ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$) pada rentang sudut (2θ) = 15 – 95° dengan *step size detector* 0,02 °/menit. Data uji XRD dilakukan analisis kualitatif dengan metode *Search-and-Match* menggunakan perangkat lunak *Match!*, sedangkan analisis kuantitatif dilakukan dengan metode *Refinement Rietveld* menggunakan perangkat lunak *Rietica*. Analisis pola XRD secara kuantitatif digunakan untuk mengetahui komposisi fasa-fasa yang teridentifikasi. Selanjutnya, uji elemental menggunakan EDX (*Energy Dispersive X-Ray*) dengan tipe *Thermo Scientific Phenom* dilakukan untuk mengidentifikasi unsur-unsur yang terkandung pada keramik uji.

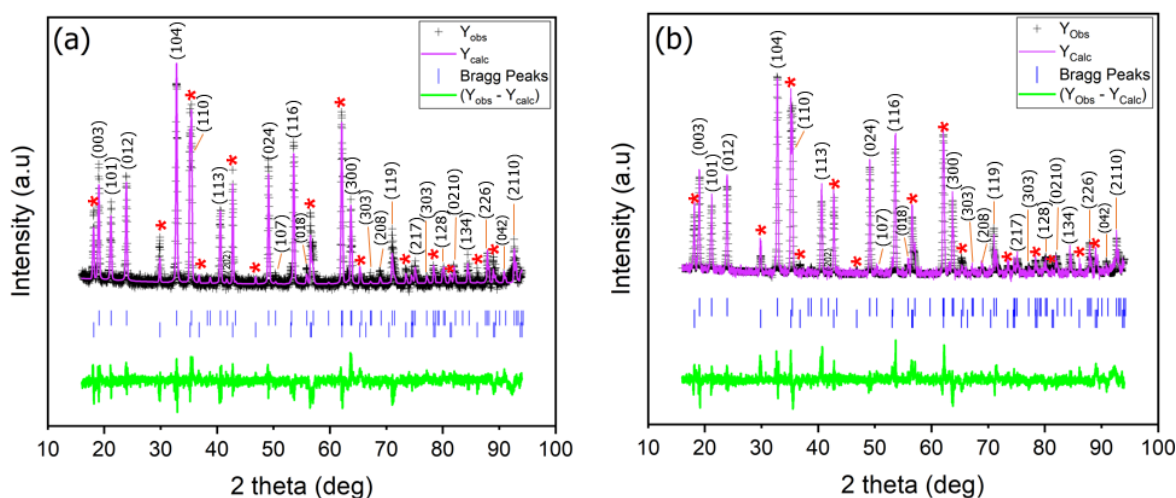
III.HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Analisis Struktur (XRD)

Gambar 2 menunjukkan pola XRD hasil analisis secara kualitatif. Sementara hasil analisis pola XRD secara kuantitatif ditunjukkan pada **Gambar 3**. Output *refinement* dari **Gambar 3** berupa parameter kesesuaian (*Figure-of-Merit*), fasa-fasa teridentifikasi, *Space Group*, %molar, konstanta kisi, sudut antara sumbu kristal dan volume sel satuan tersaji pada **Tabel 1**.



Gambar 2. Pola XRD keramik MZT02 dengan dan tanpa penambahan 4 %wt. V₂O₅, puncak dengan *hkl* = MgTiO₃ *geikielite* (PDF No. 6-494), * = Mg₂TiO₄ *qandilite* (PDF No. 25-1157)



Gambar 3. Hasil *refinement* pola XRD pada sampel MZT02 (a) tanpa V₂O₅, (b) dengan 4 %wt. V₂O₅; puncak dengan *hkl* = MgTiO₃ *geikielite* (PDF No. 6-494), "*" = Mg₂TiO₄ *qandilite* (PDF No. 25-1157), Y_{obs} = pola difraksi eksperimen (terukur), Y_{calc} = pola difraksi model (terhitung), *Bragg peaks* = puncak Bragg milik fasa-fasa teridentifikasi yaitu MgTiO₃ dan Mg₂TiO₄, garis hijau (—) = selisih intensitas puncak antara pola difraksi eksperimen dengan pola difraksi model ($Y_{obs} - Y_{calc}$)

Tabel 1 Hasil *refinement* pola XRD pada **Gambar 3**

MZT02	FoM		Fasa	Space group	%molar	Parameter kisi				Vol. sel satuan ($\times 10^{-1}$) nm ³
						Konstanta kisi (± 0.00) $\times 10^{-2}$ nm		Sudut antara sumbu kristal ($^{\circ}$)		
Tanpa 4 %wt. V ₂ O ₅	R_p	12.40	MgTiO ₃	R-3	79.33 $\pm$ 3.90	$a=b$	5.055	$a=\beta$	90.000	307.81 $\pm$ 0.042
	R_{wp}	18.70								
	GoF	3.671								
	R_{exp}	8.65				c	13.910	γ	120.000	
	R_b	MgTiO ₃ Mg ₂ TiO ₄	Mg ₂ TiO ₄	Fd-3mZ	20.67 $\pm$ 1.19	$a=b=c$	8.443	$a=\beta=\gamma$	90.000	601.80 $\pm$ 0.094
		8.04	5.99							
Dengan 4 %wt. V ₂ O ₅	R_p	12.41	MgTiO ₃	R-3	84.87 $\pm$ 4.02	$a=b$	5.055	$a=\beta$	90.000	307.87 $\pm$ 0.0389
	R_{wp}	18.61								
	GoF	3.625								
	R_{exp}	8.65				c	13.912	γ	120.000	
	R_b	MgTiO ₃ Mg ₂ TiO ₄	Mg ₂ TiO ₄	Fd-3mZ	15.13 $\pm$ 1.19	$a=b=c$	8.444	$a=\beta=\gamma$	90.000	602.06 $\pm$ 0.087
		8.90	5.62							

Berdasarkan **Gambar 2**, pola XRD pada kedua keramik uji menghasilkan fasa utama MgTiO_3 *geikielite* dengan *Space Group* R-3 (PDF No. 6-494, puncak dengan *hkl*), dan fasa Mg_2TiO_4 *qandilite* dengan *Space Group* Fd-3mZ (PDF No. 25-1157, puncak dengan simbol “*”) sebagai fasa intermediat. Kehadiran fasa Mg_2TiO_4 sebagai fasa intermediat tersebut diperkirakan terjadi akibat reaksi antara TiO_2 dengan fasa amorf yang mengandung Mg namun tidak terdeteksi oleh XRD sehingga $2\text{MgO} + \text{TiO}_2 \rightarrow \text{Mg}_2\text{TiO}_4$. Keberadaan fasa intermediat pada suatu material seringkali dianggap merugikan [13].

Referensi [13] tersebut menyatakan bahwa keramik $\text{MgTiO}_3 + x$ %wt. B_2O_3 ($x = 0 - 4$ %wt.) dengan suhu sinter 1400°C selama 3 jam dihasilkan fasa utama MgTiO_3 dan fasa minor Mg_2TiO_4 dan CaTiO_3 ketika $x = 0, 1, 3$, dan 4 %wt. Keberadaan kedua fasa minor tersebut menurunkan densitas keramik dan ϵ_r . Namun fakta berbeda justru dilaporkan oleh [16] dan [17]. Referensi [16] melaporkan bahwa terdeteksi fasa utama MgTiO_3 disertai dengan fasa intermediat MgO dan $\text{Bi}_{1,74}\text{Ti}_2\text{O}_{6,624}$ pada keramik $\text{MgTiO}_3 + x$ %wt. $\text{CuO-Bi}_2\text{O}_3\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-LiF-SiO}_2$ ($x = 4, 6, 8, 10$ %wt.). Hadirnya fasa intermediat tersebut tidak mempengaruhi densitas dan ϵ_r pada keramik uji. Referensi [17] juga melaporkan keberadaan fasa utama MgTiO_3 disertai dengan fasa intermediat Mg_2TiO_4 ketika $x = 1$ dan $2,5$ %wt pada keramik $\text{Mg}(\text{Ti}_{0,9}\text{Zr}_{0,1})\text{O}_3 + x$ %wt. $\text{LiF-B}_2\text{O}_3\text{-Bi}_2\text{O}_3$ ($x = 1; 2,5; 4; 5,5; 7; 9$ %wt.) sedangkan untuk, $x \geq 4$ %wt. fasa intermediat berubah, yaitu Mg_2TiO_4 dan Bi_2O_3 . Nilai densitas naik seiring dengan naiknya fraksi x . Naiknya densitas terbesar berkaitan dengan penggunaan bahan LAA.

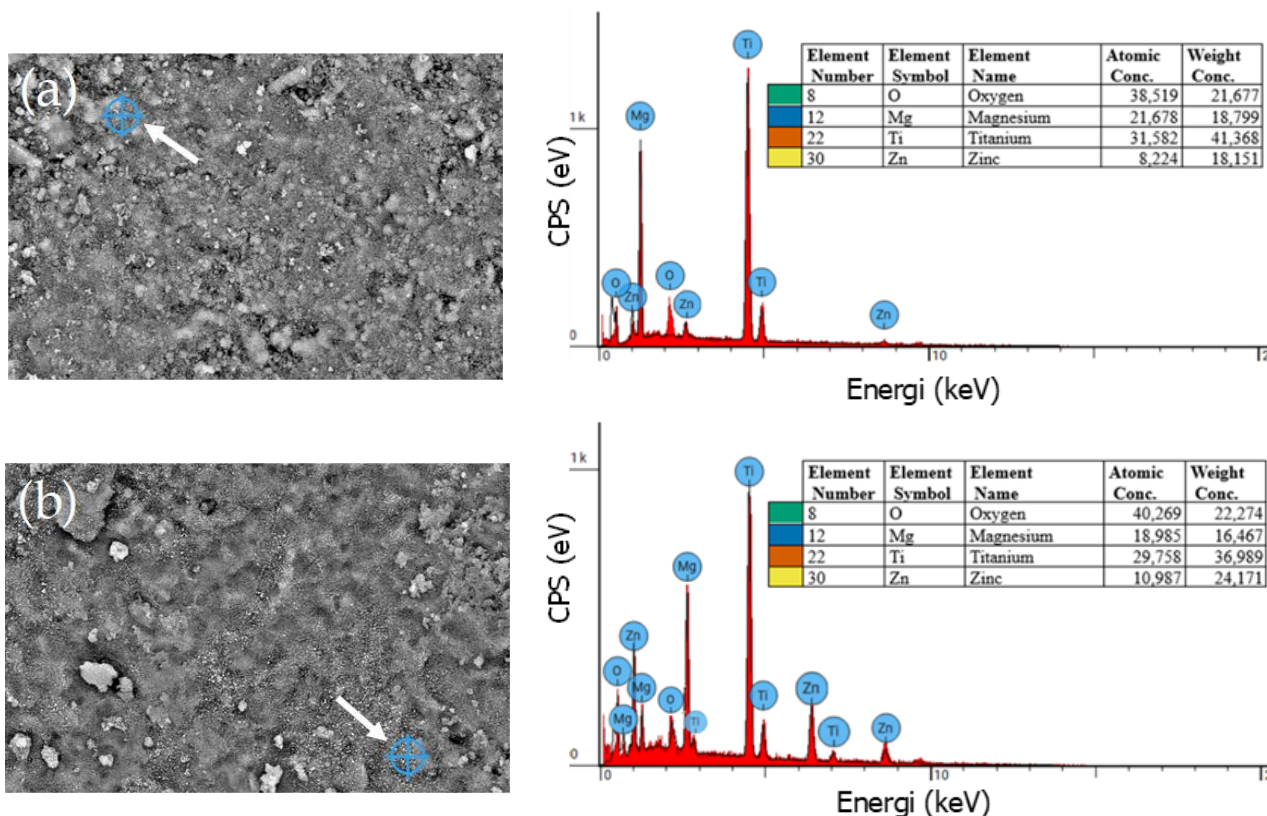
Seperti yang terlihat pada **Gambar 3**, proses *refinement* untuk sampel MZT02 dengan dan tanpa penambahan 4 %wt. V_2O_5 telah berhasil dilakukan. Keberhasilan proses *refinement* tersebut ditandai dengan garis horizontal berwarna hijau yang menunjukkan selisih antara puncak terukur dengan puncak terhitung memiliki selisih intensitas yang kecil. Selain itu, menurut Referensi [18], [19], *refinement Rietveld* dikatakan berhasil apabila menghasilkan nilai R_p , R_{wp} , R_{exp} di bawah 20% , R_b di bawah 10% , dan GoF atau χ^2 di bawah 4% . Dapat dilihat pada **Tabel 4.1**, data-data parameter kesesuaian (*FoM*) berupa indeks *Reabilitas* telah memenuhi kriteria keberhasilan proses *refinement* pada keramik uji. Oleh karena itu, proses *refinement* pada penelitian ini dapat dikatakan berhasil dan data yang dihasilkan layak digunakan untuk analisis berikutnya.

Pada **Tabel 1** juga terlihat bahwa nilai %molar fasa MgTiO_3 mengalami peningkatan dari $79,33\%$ (tanpa V_2O_5) menjadi $84,87\%$ (dengan V_2O_5). Namun, pada fasa Mg_2TiO_4 , %molar mengalami penurunan dari $20,67\%$ (tanpa V_2O_5) menjadi $15,13\%$ (dengan V_2O_5). Hal tersebut menunjukkan terjadinya penurunan intensitas

puncak untuk fasa Mg₂TiO₄ pada keramik dengan V₂O₅. Selanjutnya, nilai parameter kisi mengalami peningkatan pada keramik MZT02+V₂O₅. Pada fasa MgTiO₃, kenaikan tersebut terjadi pada parameter *c*. Tren yang sama juga terjadi pada nilai volume sel satuan. Nilai tersebut naik ketika keramik didoping V₂O₅. Berdasarkan data tersebut, doping V₂O₅ berpotensi untuk meningkatkan nilai parameter kisi dan volume sel satuan pada keramik MZT02.

B. Analisis EDX

Keberadaan fasa-fasa yang teridentifikasi pada pola XRD (**Gambar 2**) dapat dikonfirmasi dengan hasil uji EDX. **Gambar 4** berikut ini menunjukkan hasil uji EDX untuk keramik MZT02 dengan dan tanpa penambahan V₂O₅.



Gambar 4. Analisis EDX pada keramik MZT02 (a) tanpa dan (b) dengan penambahan V₂O₅. Uji EDX tersebut dilakukan pada spot lingkaran berwarna biru yang ditunjukkan tanda panah pada permukaan SEM di sebelah kiri

Berdasarkan gambar di atas, unsur-unsur yang terdeteksi pada kedua keramik uji merupakan unsur-unsur bahan awal yang digunakan yaitu O, Mg, Ti, dan Zn. Selain itu, pada keramik dengan V₂O₅ (**Gambar 4(b)**), juga hanya mengandung unsur O, Mg, Ti, dan Zn saja tanpa ditemukan unsur V. Hal ini menunjukkan bahwa penambahan doping LAA tidak mempengaruhi kandungan unsur pada keramik uji sekaligus membuktikan fungsinya sebagai bahan perekat butir-butir selama proses sinter berlangsung. Dari data konsentrasi atom pada hasil EDX tersebut dapat diketahui rasio dari masing-masing fasa yang teridentifikasi. Pada **Gambar 4(a)**, diperoleh perhitungan rasio dari masing-masing fasa dan rasio total adalah sebagai berikut:

$$\begin{aligned}
 \text{Atom Mg} &\rightarrow 0,8 \times 21,678 = 17,342 & (1) \\
 \text{Atom Zn} &\rightarrow 0,2 \times 8,224 = 1,644 & (2) \\
 \text{Total atom Mg dan Zn pada fasa MgTiO}_3 &\rightarrow 17,342 + 1,644 = 18,986 & (3) \\
 \text{Total atom Mg dan Zn pada fasa Mg}_2\text{TiO}_4 &\rightarrow ((21,678 + 8,224) - 18,986) = 10,916 & (4)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} &= 18,896 : 18,896 : 56,958 \\ \text{Rasio} &= 1 : 1 : 3 \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} (\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} &= 10,916 : 5,458 : 21,832 \\ \text{Rasio} &= 2 : 1 : 4 \end{aligned} \quad (6)$$

Total kandungan atom keseluruhan fasa (Teori):

$$(\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} = 29,812 : 24,354 : 78,790 \quad (7)$$

$$\text{Total \%atom hasil eksperimen} = 29,902 : 31,582 : 38,519 \quad (8)$$

Sementara itu, perhitungan rasio dari masing-masing fasa dan rasio total dari keramik dengan V₂O₅ pada **Gambar 4(b)** adalah sebagai berikut:

$$\text{Atom Mg} \rightarrow 0,8 \times 18,985 = 15,188 \quad (9)$$

$$\text{Atom Zn} \rightarrow 0,2 \times 10,987 = 2,197 \quad (10)$$

$$\text{Total atom Mg dan Zn pada fasa MgTiO}_3 \rightarrow 15,188 + 2,197 = 17,385 \quad (11)$$

$$\text{Total atom Mg dan Zn pada fasa Mg}_2\text{TiO}_4 \rightarrow ((18,985 + 10,987) - 17,385) = 12,587 \quad (12)$$

$$\begin{aligned} (\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} &= 17,385 : 17,385 : 52,155 \\ \text{Rasio} &= 1 : 1 : 3 \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} (\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} &= 12,587 : 6,293 : 25,174 \\ \text{Rasio} &= 2 : 1 : 4 \end{aligned} \quad (14)$$

Total kandungan atom keseluruhan fasa (Teori):

$$(\text{Mg}_{0,8} + \text{Zn}_{0,2}) : \text{Ti} : \text{O} = 29,972 : 23,678 : 77,329 \quad (15)$$

$$\text{Total \%atom hasil eksperimen} = 29,972 : 29,758 : 40,269 \quad (16)$$

Melalui perhitungan rasio tersebut, dapat dikonfirmasi bahwa pada kedua keramik uji mengandung 2 fasa yaitu fasa MgTiO₃ dan fasa Mg₂TiO₄. Berdasarkan perbandingan rasio pada **Persamaan 7 dan 8**, serta pada **Persamaan 15 dan 16**, kandungan atom (Mg + Zn) mendekati atau bahkan sama dengan rasio %atom ideal. Namun, kandungan atom Ti mengalami kelebihan dari rasio Ti yang dibutuhkan. Pada keramik tanpa V₂O₅ (**Persamaan 7 dan 8**), kelebihan Ti yang dihasilkan sebesar 7,228% sedangkan pada keramik dengan V₂O₅ (**Persamaan 15 dan 16**) kelebihan atom Ti sebesar 6,080%. Sementara itu, atom O mengalami kekurangan dari rasio yang dibutuhkan. Kondisi tersebut menunjukkan terjadinya defisit oksigen, yaitu kekosongan atau kekurangan atom O dari posisi yang seharusnya dimiliki oleh atom tersebut dalam struktur kisi kristal. Sampai dengan makalah ini ditulis, penyebab dari defisit oksigen tersebut belum dapat ditemukan.

Namun, beberapa publikasi telah menjelaskan penyebab terjadinya defisit oksigen. Referensi [20] menyebutkan defisit oksigen dapat terjadi karena doping dan non-stoikiometri kimia. Ion pada *site A* atau *B* dalam oksida perovskit yang digantikan oleh ion dengan muatan yang berbeda akan mengganggu keseimbangan muatan sehingga dapat terjadi pembentukan defisit oksigen. Selain itu, [21] menjelaskan bahwa defisit oksigen disebabkan karena tekanan parsial oksigen rendah atau kondisi reduktif ketika proses pemanasan. Ketika proses pemanasan pada suhu tinggi, keseimbangan termodinamik antara fase padat O₂ dan gas O₂ bergeser jika tekanan parsial O₂ rendah. Hal ini menyebabkan atom O keluar dari kisi untuk menurunkan energi bebas sistem dan menyebabkan defisit oksigen.

IV. PENUTUP

A. Simpulan

Keramik MZT02 dengan dan tanpa penambahan V_2O_5 telah berhasil difabrikasi menggunakan metode *liquid mixing* pada suhu sinter 1100°C ditahan 4 jam. Berdasarkan analisis XRD, fasa utama yang terdeteksi adalah MgTiO_3 , sementara Mg_2TiO_4 teridentifikasi sebagai fasa intermediat. Keramik dengan V_2O_5 menyebabkan peningkatan %molar pada fasa MgTiO_3 dan penurunan %molar pada fasa Mg_2TiO_4 . Hal ini menunjukkan penambahan V_2O_5 pada keramik uji mampu menekan pertumbuhan fasa Mg_2TiO_4 . Pada keramik MZT02+ V_2O_5 , nilai parameter kisi dan volume sel satuan naik. Keberadaan fasa-fasa pada kedua keramik uji tersebut juga dikonfirmasi oleh analisis EDX melalui perhitungan rasio dari masing-masing fasa. Data EDX menunjukkan terdeteksi unsur bahan awal yang digunakan yaitu Mg, Ti, Zn, dan O pada kedua keramik uji dengan rasio yang mendekati dengan keberadaan fasa MgTiO_3 dan Mg_2TiO_4 . Namun, penelitian ini masih terbatas pada variasi dopan V_2O_5 sehingga membatasi pemahaman komprehensif mengenai pengaruh dopan V_2O_5 terhadap sifat keramik.

B. Saran

Perlu dilakukan penambahan variasi %wt. V_2O_5 yang lebih banyak pada keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$ agar diperoleh hasil uji yang lebih komprehensif. Selain itu, karakterisasi mikrostruktur dan sifat dielektrik juga perlu dilakukan agar diperoleh pemahaman yang lebih lengkap serta mendukung perkembangan keramik dielektrik berbasis $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3$.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] W. Pan *et al.*, "Structures and Properties of LiBaF_3 Microwave Dielectric Ceramics For ULTCC Applications," *Ceram. Int.*, vol. 50, no. 21, Part C, pp. 44132–44138, 2024, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.08.262>.
- [2] J. Zhang, Z. Yue, Y. Luo, and L. Li, " $\text{MgTiO}_3/\text{TiO}_2/\text{MgTiO}_3$: An Ultrahigh-Q and Temperature-Stable Microwave Dielectric Ceramic Through Cofired Trilayer Architecture," *Ceram. Int.*, vol. 44, no. 17, pp. 21000–21003, 2018, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.08.135>.
- [3] Z. Ren *et al.*, "Enhanced Quality Factor ($\sim 336,800$ GHz) Of MgTiO_3 Ceramic By Hf Substitution For Ti-Site," *Ceram. Int.*, vol. 50, no. 6, pp. 9861–9868, 2024, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2023.12.308>.
- [4] F. U. Ermawati, Y. Taryana, Y. Sulaeman, Y. N. Wijayanto, N. Sudrajat, and W. A. Adi, "Fabrication and Characterization Of $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$ Ceramics as a 4.0 GHz Resonator in Dielectric Resonator Oscillator Module," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 34, no. 20, pp. 1–18, 2023, doi: 10.1007/s10854-023-10890-0.
- [5] M. Negishi, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki, "Formation of Ilmenite-Type Single-Crystalline MgTiO_3 Thin Films By Pulsed-Laser Deposition," *AIP Adv.*, vol. 11, no. 12, 2021, doi: 10.1063/5.0078021.
- [6] M. Wang and D. Yan, "Improved Crystalline Structure and Sintering Characteristics of Nonstoichiometric MgTiO_3 Ceramics By Sol-Gel Method," *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, vol. 97, no. 2, pp. 365–372, 2021, doi: 10.1007/s10971-020-05458-x.
- [7] H. S. Magar, A. M. Mansour, and A. B. A. Hammad, "Advancing Energy Storage and Supercapacitor Applications Through The Development of Li^+ -doped MgTiO_3 Perovskite Nano-Ceramics," *Sci. Rep.*, vol. 14, no. 1, pp. 1–18, 2024, doi: 10.1038/s41598-024-52262-6.
- [8] N. Rettiningtyas and F. U. Ermawati, "Sintesis dan Fabrikasi Keramik $(\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2})\text{TiO}_3 + 2 \text{ wt}\% \text{ Bi}_2\text{O}_3$ Sebagai Bahan Dielektrik Serta Karakterisasi Struktur dan Densitasnya Akibat Variasi Waktu Tahan Sinter," *Inov. Fis. Indones.*, vol. 9, no. 2, pp. 25–33, 2020, doi: 10.26740/ifi.v9n2.p25-33.
- [9] F. Y. Rostianbudi and F. U. Ermawati, "Fabrikasi dan Karakterisasi Struktur dan Densitas Keramik $(\text{Mg}_{0,5}\text{Zn}_{0,5})\text{TiO}_3 + x \text{ wt}\% \text{ Bi}_2\text{O}_3$ Sebagai Kandidat Material Dielektrik," *J. Inov. Fis. Indones.*, vol. 09, no. 02, pp. 72–77, 2020.
- [10] R. L. Sianturi, H. Malau, and R. Sidabutar, "Sintering Fase Cair Tanpa Tekanan pada Material Berbasis Aluminium," *J. Technol. Renew. Adv. Sci.*, vol. 01, pp. 57–64, 2024.
- [11] C. Dong, H. Wang, T. Yan, J. Zhao, J. Xu, and D. Wang, "The Influence of CaF_2 Doping on The Sintering Behavior and Microwave Dielectric Properties Of $\text{CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ Glass-Ceramics For LTCC

- Applications," *Crystals*, vol. 13, no. 5, 2023, doi: 10.3390/cryst13050748.
- [12] S. Wang *et al.*, "Investigations on Sintering Behavior and Microwave Dielectric Properties Of MgNb_2O_6 Ceramics Doping With LiF," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 32, no. 19, pp. 24320–24327, 2021, doi: 10.1007/s10854-021-06901-7.
- [13] X. Jia, S. Mao, L. Tian, S. Chen, G. Li, and W. Gao, "Influence of B_2O_3 Doping on Synthesis of MgTiO_3 Ceramics From Recycled Magnesia-Hercynite Materials," *Mater. Res. Express*, vol. 8, 2021, doi: <https://doi.org/10.1088/2053-1591/ac3fde>.
- [14] Z. Fu, Y. She, C. Chen, C. Li, and Z. Yang, "Microwave Dielectric Property of Low-Fired MgTiO_3 -Based Ceramics For LTCC Application," *Ferroelectrics*, vol. 598, no. 1, pp. 54–60, 2022, doi: 10.1080/00150193.2022.2102821.
- [15] Y. Shan, Y. Lu, X. Guo, and H. Zhou, "Microwave Dielectric Properties of $\text{V}_2\text{O}_5/\text{CeO}_2$ Doped $(\text{Mg}_{0.95}\text{Ca}_{0.05})\text{TiO}_3$ - MgO and Their Application to a Dielectric Filter," *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, vol. 21, no. 5, pp. 3601–3611, 2024, doi: 10.1111/ijac.14762.
- [16] J. Ma, X. Zhang, and Z. Yang, "Effect of Glass Additions on Sintering Behavior and Dielectric Properties of MgTiO_3 Ceramics," *Integr. Ferroelectr.*, vol. 231, no. 1, pp. 126–132, 2023, doi: 10.1080/10584587.2022.2143188.
- [17] L. Ding, H. Ma, and M. Song, "Dielectric Properties of Low-Fired $\text{MgTi}_{0.9}\text{Zr}_{0.1}\text{O}_3$ Ceramics with LBB Additive for LTCC Applications," *Integr. Ferroelectr.*, vol. 232, no. 1, pp. 74–80, 2023, doi: 10.1080/10584587.2023.2173443.
- [18] S. N. Maulana Ishak and F. U. Ermawati, "Characterization of $(\text{Mg}_{0.6}\text{Zn}_{0.4})\text{TiO}_3$ Ceramics as Dielectric Resonator Materials in Microwave Frequencies," *Spektra J. Fis. dan Apl.*, vol. 7, no. 1, 2022, doi: 10.21009/spektra.071.02.
- [19] S. A. Hermadianti and F. U. Ermawati, "Pengaruh Waktu Tahan Kalsinasi terhadap Komposisi Fasa dan Ukuran Kristalit Serbuk $\text{Mg}(\text{Ti}_{0.99}\text{Sn}_{0.01})\text{O}_3$ Hasil Sintesis dengan Metode Pencampuran Larutan," *Inov. Fis. Indones.*, vol. 12, no. 2, pp. 1–9, 2023, doi: 10.26740/ifi.v12n2.p1-9.
- [20] Z. Li, X. Mao, D. Feng, and M. Li, "Prediction of Perovskite Oxygen Vacancies For Oxygen Electrocatalysis at Different Temperatures," *Nat. Commun.*, pp. 1–12, 2024, doi: 10.1038/s41467-024-53578-7.
- [21] R. B. Wexler, G. S. Gautam, E. B. Stechel, and E. A. Carter, "Factors Governing Oxygen Vacancy Formation in Oxide Perovskites," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 143, no. 33, pp. 13212–13227, Aug. 2021, doi: 10.1021/jacs.1c05570.