

ANALISIS KOMPOSISI FASA SERBUK $MgTiO_3$ HASIL PREPARASI DENGAN METODE PENCAMPURAN LARUTAN

¹Muhammad H. Ahfa, ²Frida U Ermawati

^{1,2} Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Surabaya
Email: ¹muhammadahfa@mhs.unesa.ac.id, ¹nuhaahfa@gmail.com; ²frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

Penelitian ini melaporkan hasil kerja untuk mensintesis serbuk magnesium titanate ($MgTiO_3$) dengan metode pencampuran larutan. Tujuannya adalah untuk mempelajari komposisi fasa dari fasa-fasa yang terbentuk pada sistem tersebut. Preparasi dilakukan dengan menggunakan bahan awal yang berupa serbuk logam Mg, Ti dan Sn (*Merck*) serta HCl sebagai pelarut. Karakterisasi struktur dilakukan dengan uji *x-ray diffraction* (XRD) dengan alat XRD Bragg-Brentano Philips X'pert Diffractometer dengan radiasi $CuK\alpha$. Selanjutnya, analisis kualitatif terhadap data XRD dilakukan dengan menggunakan perangkat lunak *Match!*, sedangkan analisis kuantitatif dengan metode *Rietveld* yang diimplementasikan pada perangkat lunak *Rietica*. Hasil penelitian menunjukkan bahwa: (1) struktur dari sampel uji tersebut terbangun dari fasa utama $MgTiO_3$ (PDF No. 06-0494) dengan persentase molar sebesar $(96,89 \pm 1,81) \%$ dan TiO_2 *rutile* (PDF No. 21-1276) sebesar $(3,11 \pm 0,63) \%$ sebagai fasa sekunder; (2) nilai densitas pada serbuk $MgTiO_3$ sebesar $3,88 \text{ gr.cm}^{-3}$ dan (3) nilai ukuran volume sel satuan dari sampel uji tersebut sebesar $307,37 \pm 1,89 \text{ nm}^3$.

Kata kunci: $MgTiO_3$, difraksi sinar-x, komposisi fasa, metode *Rietveld*.

Abstract

The paper reports the work to synthesize magnesium titanate ($MgTiO_3$) powder using liquid mixing method. The aim was to study the phase composition in the system. Preparation was carried out by using Mg, Ti and Sn metal powders (*Merck*) as the starting materials and HCl as a solvent. Structure characterization was carried out by *x-ray diffraction* (XRD) using an XRD Bragg-Brentano Philips X'pert Diffractometer with $CuK\alpha$ radiation. Qualitative analysis on the XRD data was completed using *Match!* software, while the quantitative analysis was performed by the *Rietveld* method implemented in *Rietica* software. The results showed that: (1) the structure of the system was composed by the main phase of $MgTiO_3$ (PDF No. 06-0494) with molar percentage of $(96.89 \pm 1.81) \%$ and TiO_2 *rutile* (PDF No. 21-1276) as the secondary phase $(3.11 \pm 0.63) \%$; (2) the density of the main phase $MgTiO_3$ powder is 3.88 gr.cm^{-3} and (3) the size unit cell volume is $307.37 \pm 1.89 \text{ nm}^3$.

Keywords: $MgTiO_3$, x-ray diffraction, phase composition, *Rietveld* method.

PENDAHULUAN

Magnesium titanate ($MgTiO_3$) merupakan salah satu bahan keramik dielektrik yang sangat populer digunakan sebagai filter, osilator, resonator, dan radar untuk sistem komunikasi pada frekuensi gelombang mikro (Ermawati *et al.*, 2016; Samyuktha *et al.*, 2015). Terdapat tiga sifat utama bahan keramik dielektrik berbasis *magnesium titanate* dapat digunakan untuk aplikasi pada daerah komunikasi gelombang mikro yaitu: 1) nilai faktor kualitas (Q_f) yang tinggi, 2) nilai permitivitas (ϵ_r) relatif tinggi, dan 3) koefisien suhu pada frekuensi resonansi mendekati nol (τ_f) (Xue *et al.*, 2012; Zhang *et al.*, 2012). $MgTiO_3$ memiliki ketiga sifat tersebut yaitu nilai

permitivitas relatif tinggi ($\epsilon_r \sim 17$), faktor kualitas tinggi ($Q_f \sim 160.000$ pada frekuensi 7 GHz), serta nilai τ_f ($-50 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$) (Huang *et al.*, 2014). $MgTiO_3$ sendiri itu mempunyai nama mineral *geikielite*, struktur *ilmenite* dengan *space group* R-3 H, dan parameter kisi $a = b \neq c$ (Haryani dan Pratapa, 2011; Pfaff, 1994).

Selama ini serbuk $MgTiO_3$ banyak disintesis dengan metode *conventional solid-state reaction* (Jo *et al.*, 2015; Samyuktha *et al.*, 2015; Xue *et al.*, 2012) karena dalam orientasi industri itu hasilnya banyak namun dibutuhkan suhu kalsinasi tinggi yaitu $1200 \text{ }^\circ\text{C}$ dan suhu sintering tinggi (diatas $1300 \text{ }^\circ\text{C}$) serta masih ditemukan fasa sekunder yang sulit dihindari, metode *Mechano-chemical complexation routes* (Cho *et al.*,

2005) dimana fasa $MgTiO_3$ berhasil diperoleh pada suhu sintering 1170 °C jauh lebih rendah dibandingkan menggunakan metode *conventional solid-state reaction*, metode *wet chemical peroxide route* (Pfaff, 1994) fasa $MgTiO_3$ diperoleh pada suhu kalsinasi 1300 °C dan suhu sintering 1200 °C, metode wet mixing (Ermawati *et al.*, 2015) dimana fasa $MgTiO_3$ diperoleh pada suhu sintering (1100-1400 °C). Penelitian-penelitian terkait dengan sintesis $MgTiO_3$ diketahui bahwa permasalahan utama yang muncul dalam sintesis tersebut adalah tingginya suhu kalsinasi dan suhu sintering serta munculnya fasa sekunder pada akhir produk.

Dalam penelitian ini dilakukan sintesis $MgTiO_3$ dengan metode yang relatif baru dan sesuai dengan sarana atau fasilitas yang ada di Laboratorium Material, Jurusan Fisika, Universitas Negeri Surabaya namun tetap dapat menghasilkan fasa yang diinginkan, yaitu metode pencampuran larutan. Untuk mengetahui kandungan fasa pada serbuk $MgTiO_3$ dilakukan uji XRD diikuti dengan analisis kualitatif dan kuantitatif.

Analisis kualitatif dilakukan dengan menggunakan perangkat lunak *Match!*, yang bertujuan untuk mengidentifikasi fasa-fasa kristalin yang ada di dalam sampel uji. Berdasarkan hasil pola difraksi sinar-x dapat dilihat puncak-puncak difraksi dari fasa yang terbentuk. Proses identifikasi fasa tersebut didasarkan pada pencocokan data posisi puncak yang terukur dengan basis data (*database*) pada perangkat lunak *Match!* yang disebut *Powder Diffraction File* (PDF).

Analisis kuantitatif dilakukan bertujuan untuk mengetahui komposisi fasa pada sebuah sampel uji yang diuji dengan difraksi sinar-x. Analisis kuantitatif dilakukan dengan metode *Rietveld* (Rietveld, 1969) yang diimplementasikan pada perangkat lunak *Rietica* (Hunter, 1998a). Analisis *Rietveld* merupakan metode pencocokan tak-linier kurva pola difraksi terhitung (model) dengan pola difraksi terukur yang didasarkan pada data struktur kristal dengan menggunakan metode kuadrat terkecil (*least-square*) (Hunter, 1998b). Pencocokan tersebut dilakukan dengan mengubah parameter-parameter dalam model pola difraksi terhitung yang dinyatakan dalam persamaan intensitas difraksi (Hunter, 1998b).

Dengan demikian tujuan dari penelitian ini adalah untuk mempelajari pengaruh komposisi fasa pada serbuk $MgTiO_3$.

METODE

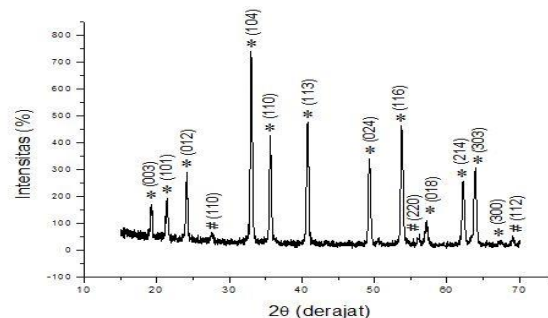
Penelitian ini tergolong dalam jenis penelitian eksperimen karena dalam prosesnya data-data diperoleh dengan melakukan percobaan di Laboratorium Material Fisika, Universitas Negeri Surabaya. Tiga proses utama yang dilakukan dalam penelitian ini yaitu: 1) sintesis, 2) karakterisasi struktur, dan 3) analisis dari hasil karakterisasi tersebut.

Serbuk logam Mg, Ti, Sn (*Merck*) dan HCl sebagai bahan dasar dan pelarut dalam penelitian ini. Sintesis dilakukan dengan melarutkan masing-masing serbuk logam tersebut secara terpisah dalam *hydrochloric acid* (HCl) sesuai dengan perhitungan stoikiometri menggunakan *hotplate stirrer* sehingga diperoleh larutan $MgCl_2$, $TiCl_4$ dan $SnCl_4$. Selanjutnya, larutan $MgCl_2$, $TiCl_4$ dan $SnCl_4$ dicampur hingga homogen dan dikeringkan untuk mendapatkan serbuk $MgTiO_3$ amorf. Selanjutnya, serbuk dikalsinasi pada suhu 800 °C dan ditahan selama 2 jam. Serbuk hasil kalsinasi dihaluskan kembali. Kemudian, serbuk dikarakterisasi XRD dan dianalisis data komposisi fasanya.

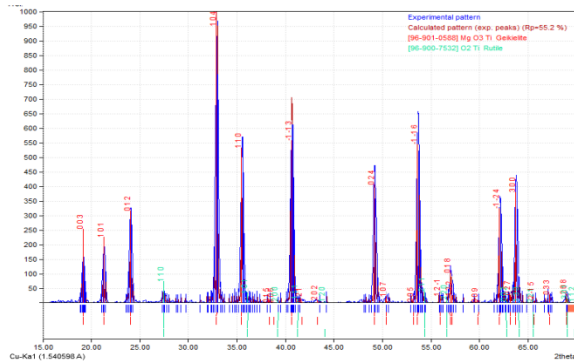
HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis Kualitatif dengan Perangkat Lunak *Match!*

Pola XRD dari serbuk $MgTiO_3$ yang telah dikalsinasi pada suhu 800 °C ditunjukkan pada Gambar 1. Puncak-puncak difraksi dengan simbol (*) merupakan milik fasa $MgTiO_3$ (PDF No. 06-0494) dan simbol (#) milik fasa TiO_2 *rutile* (PDF No. 21-1276). Proses identifikasi fasa tersebut didasarkan pada pencocokan antara data posisi puncak terukur dengan puncak basis data yang disebut *Powder Diffraction File* (PDF) untuk fasa yang sesuai pada perangkat lunak *Match!*. (Gambar 2 dan 3)



Gambar 1. Pola XRD CuK_{α} ($\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$) untuk serbuk $MgTiO_3$ hasil kalsinasi pada suhu 800 °C dan ditahan selama 2 jam. * = $MgTiO_3$ dan # = TiO_2 .

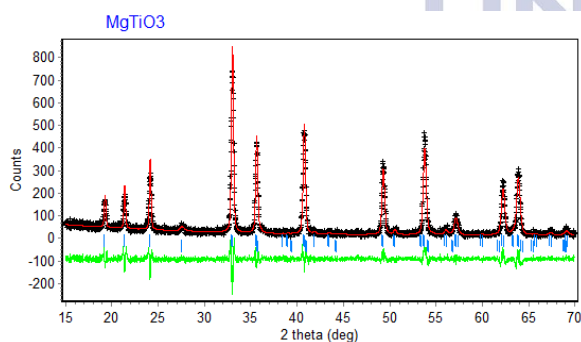


Gambar 2. Hasil analisis kualitatif pola XRD pada Gambar 1 menggunakan perangkat lunak *Match!*.

Hasil analisis kualitatif terhadap puncak-puncak difraksi pada Gambar 2 menunjukkan bahwa pada sampel tersebut terdapat dua macam fasa yang berbeda, yaitu MgTiO₃ (PDF No. 06-0494) sebagai fasa utama dan TiO₂ *rutile* (PDF No. 21-1276) sebagai fasa sekunder.

Analisis Kuantitatif dengan Metode Rietveld dan Perangkat Lunak *Rietica*

Data hasil analisis kualitatif pada Gambar 2 tersebut selanjutnya dianalisis secara kuantitatif dengan metode *Rietveld* yang diimplementasikan pada perangkat lunak *Rietica* agar diperoleh data-data: volume sel satuan, fraksi berat, fraksi molar dan densitas. Gambar 3 menunjukkan hasil refinement tersebut, dimana puncak berwarna merah = pola difraksi terhitung (model), puncak berwarna hitam = pola difraksi terukur, garis-garis tegak berwarna biru = puncak-puncak *Bragg* milik kedua fasa yang teridentifikasi tersebut, kurva warna hijau = selisih intensitas antara pola terukur dan terhitung.



Gambar 3. Pola hasil akhir refinement yang diperoleh dari perangkat lunak *Rietica* untuk pola XRD pada Gambar 1. GoF = 1,88 %, $R_p = 14,40$ %, $R_{wp} = 18,71$ % dan $R_{exp} = 13,62$ %.

Hasil penghalusan dengan perangkat lunak tersebut dapat dinyatakan *acceptable* jika nilai GoF (*goodness-of-fit*) kurang dari 4 % dan nilai-nilai kesesuaian parameter R_p dan R_{wp} kurang dari 20 % (Rietveld, 1969). Hasil luaran penghalusan metode *Rietveld* untuk sampel MgTiO₃ ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Hasil luaran penghalusan metode *Rietveld* dengan menggunakan perangkat lunak *Rietica* pada sampel MgTiO₃.

Parameter	Fasa Yang Teridentifikasi Pada Sampel	
	MgTiO ₃	TiO ₂
Volume sel satuan (nm ³)	307,37 ± 1,89	61,98 ± 0,03
Fraksi Berat (%)	307,953 ± 0,035	75,019 ± 0,007
Fraksi Molar (%)	96,89 ± 1,81	3,11 ± 0,63
Densitas (g.cm ⁻³)	3,88	5,87

Berdasarkan data pada Tabel 1 dapat diketahui bahwa kesesuaian antara pola difraksi terhitung dan terukur untuk sampel uji tersebut memiliki nilai GoF sebesar 1,88 % serta nilai-nilai parameter R_p dan $R_{wp} < 20$ %. Dengan demikian hasil luaran dari penghalusan ini dapat dinyatakan *acceptable*.

Pada Tabel 1 juga ditunjukkan bahwa densitas fasa MgTiO₃ dari sampel uji tersebut sebesar 3,88 gr.cm⁻³. Selain itu, data ukuran volume sel satuan sebesar (307,37 ± 1,89) nm³.

PENUTUP

Simpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan ini dapat disimpulkan bahwa serbuk MgTiO₃ terbentuk dari fasa utama MgTiO₃ (PDF No. 06-0494) memiliki kuantitas sebesar 96,9 % dan TiO₂ *rutile* (PDF No. 21-1276) memiliki kuantitas sebesar 3,1 % sebagai fasa sekunder. Nilai densitas pada serbuk MgTiO₃ sebesar 3,88 gr.cm⁻³ dan nilai ukuran volume sel satuan dari sampel uji tersebut sebesar (307,37 ± 1,89) nm³.

Saran

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut dengan variasi suhu kalsinasi untuk mengetahui perubahan struktur fasa yang terbentuk dan juga komposisi fasanya.

DAFTAR PUSTAKA

- Astutik, P., Haryani, L. I., Baqiya, M. A., Pratapa, S. 2011. Pengaruh Aktivasi Mekanik Terhadap Pembentukan Fasa MgTiO₃ dan MgTi₂O₅.
- Ermawati, Frida Ulfah. 2017. *Fisika Bahan Keramik*. Surabaya: Unesa University Press.
- Ermawati, Frida U., Suminar Pratapa, S., Suasmoro, Thomas Hübner, and Ulrich Banach. 2016. Preparation and Structural Study of Mg_{1-x}Zn_xTiO₃ Ceramics and Their Dielectric Properties from 1 Hz to 7.7 GHz. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 27 (7): 6637–45. doi.org/10.1007/s10854-016-4610-6.
- Ermawati, F. U., Suasmoro, S., Pratapa, S. 2015. A Simple Dissolved Metals Mixing Route to Prepare Nanostructured Mg_{0.8}Zn_{0.2}TiO₃ Solid Solution. *Adv. Mater. Rsrch.* Vol. 1112, pp. 47-52. doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.1112.47.
- G. Pfaff. 1994. Peroxide Route for Synthesis of Magnesium Titanate Powders of Various Compositions. *Ceramics International* 20 111-116.
- Haryani, L. I., Pratapa, S. 2011. Sintesis Serbuk MgTiO₃ dengan Metode Pencampuran Larutan dan Penggilingan Serbuk.
- Huang, JB., Yang, B., Yu, CY., 2015. Microwave and terahertz dielectric properties of MgTiO₃-CaTiO₃ ceramics. doi.org/10.1016/j.matlet.2014.09.122. *Materials Letters* Volume 138, 1 January 2015, Pages 225-227.
- Hunter, B. 1998. Rietica A Visual Rietveld Program. News letter of International Union of Crystallography, Commission on Powder Diffraction 21.
- Hunter, B. A., Howard, C.J. 1998b. LPHM: A computer program for Rietveld analysis of x-ray and neutron powder diffraction patterns. Australia: A Lucas Heights Research Laboratories.
- Pratapa, S. 2008. Analisis Rietveld. Bahan kuliah dan pelatihan analisis data difraksi dengan metode Rietveld. Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS).
- Rietveld, H. M. 1969. A profile refinement method for nuclear and magnetic structures. *Journal of Applied Crystallography* 2(2): 65-71.
- Samyukta, V. S., Kumar, A. G. S., Rao., T. P. 2016. *Adv. Mater. Rsrch.* Vol.1112, pp. 47-52. doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.1112.47.
- Woo, W., Kakimoto, K., Ohsato, H. 2015. Microwave dielectric properties and low-temperature sintering of MgTiO₃-SrTiO₃ ceramics with B₂O₃ or CuO. doi.org/10.1016/j.mseb.2005.02.061. *Materials Science and Engineering: B* Vol.121, Issues 1–2, 25 July 2005, Pages 48-53.
- Xue, X., Yu, H., Xu, G. 2013. Phase composition and microwave dielectric properties of Mg-excess MgTiO₃ ceramics. *J. Mater.* Vol.24, pp. 1287-1291. doi: 10.1007/s10854-012-0921-4.s.
- Zhang., Mingming., Lingxia Li, Wangsuo Xia, and Qingwei Liao. 2012. “Structure and Properties Analysis for MgTiO₃ and (Mg_{0.97}M_{0.03})TiO₃ (M=Ni, Zn, Co and Mn) Microwave Dielectric Materials.” *Journal of Alloys and Compounds* 537 (October):76–79, doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.05.026.