

Sintesis Larutan Padat $Zn_{0,1}Mg_{0,9}TiO_3$ Kemurnian Tinggi Menggunakan Metode Pencampuran Larutan

Firda Siti Nurchosiya dan Suminar Pratapa

Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111

E-mail: suminar.pratapa@gmail.com

Abstrak—Telah dilakukan penelitian sintesis serbuk larutan padat $Zn_{0,1}Mg_{0,9}TiO_3$ (ZMT01) menggunakan metode pencampuran larutan pada temperatur kalsinasi 550°C dengan variasi waktu penahanan. Bahan dasar yang digunakan dalam sintesis ini adalah serbuk Ti dan Mg, sedangkan serbuk Zn sebagai bahan aditif. Sintesis dilakukan dengan melarutkan masing-masing serbuk ke dalam HCl. Hasil pelarutan kemudian dicampur dan diaduk selama 5 jam, lalu dikeringkan di udara pada temperatur 110°C dan dikalsinasi pada temperatur 550°C dengan variasi waktu penahanan 1, 2, 4 dan 6 jam. Karakterisasi hasil kalsinasi serbuk ZMT01 dilakukan menggunakan *X-Ray Diffractometer*, dan di analisis kuantitatif menggunakan perangkat lunak *Rietica*. Hasil analisis menunjukkan bahwa fraksi berat relatif fasa geikelit mencapai 97,9% pada waktu penahanan 6 jam.

Kata Kunci—Pencampuran larutan, magnesium titanat, larutan padat, XRD.

I. PENDAHULUAN

MAGNESIUM Titanium Oksida ($MgTiO_3$) adalah senyawa kimia dari magnesium, titanium dan oksigen dengan nama mineral magnesium titanat (*geikelite*). $MgTiO_3$ banyak dimanfaatkan untuk kapasitor, resonator, antena untuk komunikasi, radar, satelit *direct broadcasting* dan sistem operasi *global positioning* pada frekuensi gelombang mikro [1–4].

Beberapa metode sintesis telah dikembangkan untuk menghasilkan $MgTiO_3$ (geikelit) seperti *solid state reaction method* [4–6], *chemical coprecipitation* [7], *mechanochemical complexation route* [1], *metalorganic chemical vapor deposition* [7], *metalorganic solution deposition technique* [8], *sol-gel method* [2], [9], [10] and *thermal decomposition of peroxide precursors* [11]. Para peneliti tersebut berhasil meneliti $MgTiO_3$ pada suhu yang relatif tinggi, yaitu rata-rata diatas 1000°C baik dalam padatan maupun serbuk.

Dalam preparasi sampel untuk menghasilkan $MgTiO_3$ murni dengan metode pencampuran larutan (*solid solution*) menyebabkan terbentuk fasa kedua $MgTi_2O_5$ sebagai fasa intermediet selama pertumbuhan butir, terkenal sangat sulit untuk dihilangkan dari preparasi dengan cara pencampuran oksida. Dalam penelitian ini, metode yang digunakan adalah metode pencampuran larutan dengan menggunakan doping

substitusi dengan dopan Zn^{2+} pada $MgTiO_3$. Dengan penambahan Zn^{2+} diharapkan fasa intermediet $MgTi_2O_5$ tidak terdeteksi lagi. Hasil yang diharapkan dengan penambahan Zn^{2+} juga dapat menurunkan suhu kalsinasi ZMT01 [12].

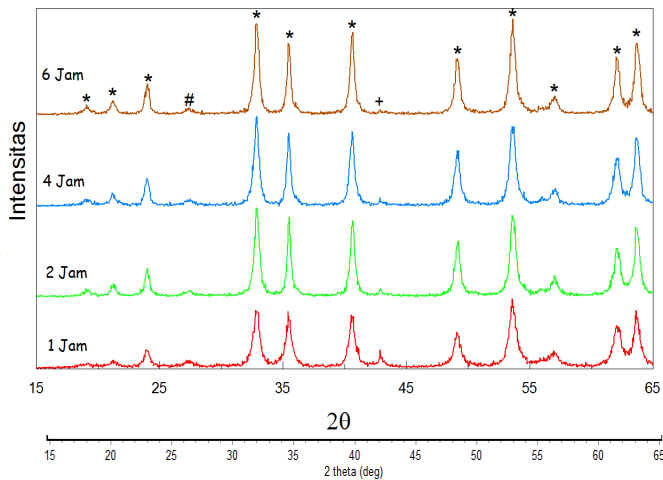
Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan fasa geikelit ($MgTiO_3$) dengan kemurnian tinggi menggunakan metode pencampuran larutan pada temperatur kalsinasi 550°C dan variasi waktu penahanan.

II. METODOLOGI PENELITIAN

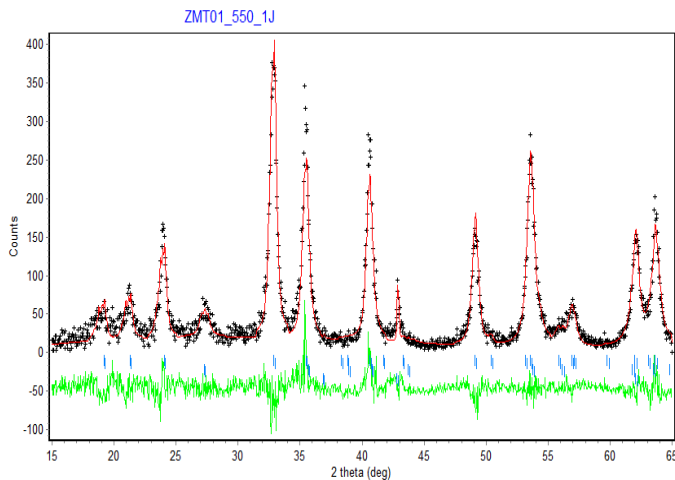
Sintesis dilakukan dengan melarutkan serbuk Zn tanpa pemanasan dalam larutan asam HCl 37% selama 45 menit, Mg tanpa pemanasan dalam larutan asam HCl 37% selama 90 menit, kemudian melarutkan serbuk Ti ke dalam HCl 37% dengan pemanasan 50°C selama 150 menit. Masing-masing larutan dicampur dan diaduk selama 5 jam tanpa pemanasan sehingga terbentuk larutan hasil pencampuran dengan warna ungu kehitaman dan didapatkan larutan homogen. Selanjutnya, larutan tersebut dikeringkan pada suhu 110°C sampai mengerak didasar gelas dengan warna putih keunguan dan digerus dengan mortar selama 30 menit, sehingga diperoleh serbuk ZMT01. Serbuk ZMT01 dikalsinasi pada temperatur 550°C selama 1, 2, 4 dan 6 jam. Karakterisasi menggunakan *X-Ray Diffractometer* dengan radiasi $CuK\alpha$ dan rentang sudut $15\text{--}65^\circ$ dengan *step size* $0,04^\circ$. Analisis data difraksi meliputi identifikasi fasa menggunakan perangkat lunak *Match!* Dan perhitungan komposisi fasa menggunakan *Rietica*.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis identifikasi fasa dari data difraksi menggunakan *Match!* bertujuan untuk mengetahui fasa-fasa yang terbentuk pada sampel serbuk ZMT01, dan diperoleh fasa-fasa yang terbentuk yaitu geikelit ($MgTiO_3$), rutil dan periklas, dimana fasa geikelit adalah fasa dominan. Pada Gambar 1, hasil pencocokan pola difraksi dengan perangkat lunak *Match!* tidak teridentifikasi fasa yang mengandung unsur Zn, hal ini menunjukkan bahwa ion Zn^{2+} dapat mensubstitusi Mg^{2+} sehingga terbentuk larutan padat $Zn_{0,1}Mg_{0,9}TiO_3$. Berdasarkan kaidah Hume-Ruthery bahwa salah satu kaidah kelarutan



Gambar 1. Pola Difraksi Sinar-X (radiasi CuK α dan *step size* 0,04 $^\circ$) pada sampel ZMTT01 dengan temperatur kalsinasi 550 $^\circ$ C selama 1, 2, 4 dan 6 jam. Keterangan: * = Geikelit, # = Rutil, + = Periklas

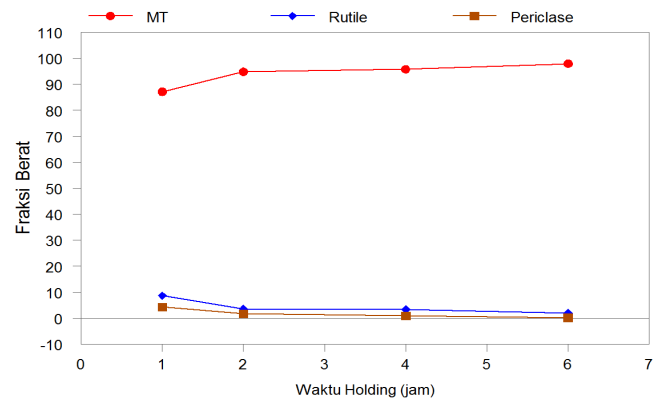


Gambar 2. Contoh pola hasil akhir penghalusan yang diperoleh dari perangkat lunak *Rietica* untuk sampel ZMT01 pada temperatur kalsinasi 550 $^\circ$ C selama 1 jam. Puncak warna merah adalah pola difraksi terhitung, puncak warna hitam adalah pola difraksi terukur, kurva paling bawah adalah *difference plot*.

padat substitusi yaitu faktor ukuran. Supaya terjadi larutan padat substitusi, perbedaan ukuran atom terlarut dan atom pelarut lebih kecil dari 15%. Selain faktor ukuran, struktur kristal keduanya harus sama [13].

Pada ZMT01, jari-jari ion Zn²⁺ (0,074 nm) mirip dengan jari-jari ion Mg²⁺ (0,072 nm) dengan perbedaan <15% dan struktur kristal (*Hexagonal Close Packed*) kedua unsur sama, sehingga terbentuk serbuk larutan padat ZMT01 dan kejadian substitusi tersebut tidak mengakibatkan adanya penyimpangan posisi puncak. Larutan padat tersebut terbentuk dalam rentang kontinyu yang disebabkan oleh faktor kesamaan struktur kristal Zn²⁺ dan Mg²⁺.

Pada Gambar 1, secara kualitatif pola difraksi menggambarkan intensitas fasa rutil dan fasa periklas menurun, sedangkan intensitas fasa geikelit meningkat dengan meningkatnya waktu penahanan pada temperatur 550 $^\circ$ C. Keberadaan Rutil dan Periklas menunjukkan bahwa ion-ion yang mengandung Mg²⁺ dan Ti⁴⁺ belum sempurna membentuk



Gambar 3. Hubungan waktu penahanan terhadap fraksi berat fasa ZMT01 pada temperatur kalsinasi 550 $^\circ$ C.

Tabel 1.

Tingkat kesesuaian (*Figures-of-Merit*) pencocokan Rietveld dengan *Rietica* (atas) dan luaran hasil perhitungan komposisi fasa (bawah)

Waktu penahanan	<i>Figures-Of-Merit</i>		
	R _p (%)	R _{wp} (%)	GoF
1 jam	15,7	21,9	2,4
2 jam	14,6	20,5	1,7
4 jam	14,9	22,3	2,5
6 jam	14,9	21,7	2,3

Waktu penahanan	Fraksi Berat		
	Geikelit	Rutil	Periklas
1 jam	87,1(39)	8,7(11)	4,2(11)
2 jam	94,8(29)	3,6(5)	1,6(6)
4 jam	95,8(28)	3,4(5)	0,9(2)
6 jam	97,9(31)	1,9(5)	0,2(1)

fasa glikelit.

Setelah identifikasi fasa, dilanjutkan dengan analisis kuantitatif menggunakan perangkat lunak *Rietica* yang menggunakan metode pencocokan antara pola difraksi terhitung dan terukur. Analisis kuantitatif bertujuan untuk identifikasi komposisi fasa. Pola difraksi terhitung dibuat dengan menggunakan ICSD (*Inorganic Crystal Structure Database*) dari masing-masing fasa yang terdapat pada sampel, sedangkan pola difraksi terukur adalah pola difraksi hasil keluaran karakterisasi dengan XRD. Selanjutnya adalah penghalusan terhadap parameter-parameter pada pola terhitung untuk dicocokkan pada pola difraksi terukur sampel ZMT01. Contoh plot hasil penghalusan dengan *Rietica* diilustrasikan pada Gambar 2, sedangkan Tabel 1 adalah hasil keluaran dari proses penghalusan masing-masing variabel dari data terhitung.

Berdasarkan pada Tabel 1, hasil analisis penghalusan yang dilakukan pada semua sampel dapat diterima karena memenuhi kriteria yaitu nilai GoF < 4% [14]. Pada Gambar 3, menunjukkan fraksi berat relatif fasa geikelit jauh lebih besar dari pada fraksi berat relatif rutil dan periklas. Dengan meningkatnya waktu penahanan, fraksi berat relatif fasa rutil,

periklas menurun, sedangkan fraksi berat relatif geikelit meningkat sampai kemurnian tinggi yaitu 97,9% pada waktu penahan 6 jam. Hal ini menunjukkan bahwa ion-ion Ti^{4+} dan Mg^{2+} semakin membentuk $MgTiO_3$ dengan meningkatnya waktu penahanan pada temperatur 550°C.

IV. KESIMPULAN

Dari penelitian ini dapat disimpulkan bahwa untuk sampel $Zn_{0,1}Mg_{0,9}TiO_3$ pada temperatur kalsinasi 550°C, fraksi berat relatif fasa geikelit meningkat, fraksi berat relatif fasa rutil menurun dengan meningkatnya waktu penahanan. Dan fraksi berat relatif fasa geikelit diperoleh dengan kemurnian tinggi 97,9% pada waktu penahanan 6 jam.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada laboratorium Fisika Material Jurusan Fisika FMIPA ITS yang telah menyediakan fasilitas kepada penulis untuk menyelesaikan penelitian ini. Penulis juga meyampaikan terimakasih kepada LPPM ITS yang memberikan dukungan finansial untuk pelaksanaan penelitian ini melalui Hibah Penelitian Unggulan ITS tahun 2012.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] C. HM, H. B, and M. JM, "Preparation of $MgTiO_3$ by an improved chemical coprecipitation method," *Journal of materials science letters*, Vol. 19, No. 1570–1572, (1997).
- [2] Y.-M. Miao, Q.-L. Zhang, H. Yang, and H.-P. Wang, "Low-temperature synthesis of nano-crystalline magnesium titanate materials by the sol-gel method," *Materials Science and Engineering: B*, Vol. 128, No. 1–3, (2006, Mar) 103–106.
- [3] W. W. Cho, K. Kakimoto, and H. Ohsato, "Microwave Dielectric Properties and Low-Temperature Sintering of $MgTiO_3$ - $SrTiO_3$ Ceramics With B_2O_3 or CuO ," *Materials Science and Engineering B*, Vol. 121, (2005) 48–53.
- [4] N. Stubičar, A. Tonejc, and M. Stubičar, "Microstructural evolution of some MgO - TiO_2 and MgO - Al_2O_3 powder mixtures during high-energy ball milling and post-annealing studied by X-ray diffraction," *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 370, No. 1–2, (2004, May) 296–301.
- [5] F. Belnou, J. Bernard, rô, me, D. Houivet, and J.-M. Haussonne, "Low temperature sintering of $MgTiO_3$ with bismuth oxide based additions," *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 25, No. 12, (2005) 2785–2789.
- [6] K. Sreedhar and N. . Pavaskar, "Synthesis of $MgTiO_3$ and $Mg_4Nb_2O_9$ using stoichiometrically excess MgO ," *Materials Letters*, Vol. 53, No. 6, (2002, Apr) 452–455.
- [7] J. M. Zeng, H. Wang, S. X. Shang, Z. Wang, and M. Wang, "Preparation and characterization of epitaxial MgO thin film by atmospheric-pressure metalorganic chemical vapor deposition," *Journal of Crystal Growth*, Vol. 169, No. 3, (1996, Des.) 474–479.
- [8] M. S. Jiefan Liao, "Crystallization of titania and magnesium titanate from mechanically activated $Mg(OH)_2$ and TiO_2 gel mixture," *Materials Research Bulletin*, No. 4, 385–392.
- [9] S. Komarneni and Abothu, "Sol-Gel Processing of Some Electronceramic Powders."
- [10] I. R. Abothu, A. V. Prasada Rao, and S. Komarneni, "Nanocomposite and monophasic synthesis routes to magnesium titanate," *Materials Letters*, Vol. 38, No. 3, (1999, Feb). 186–189.
- [11] V. Parvanova and M. Maneva, "Thermal decomposition of magnesium peroxotitanate to $MgTiO_3$," *Thermochimica Acta*, Vol. 279, No. 0, (1996, Jun) 137–141.
- [12] J. L. H. Cheng-Liang Huang, "Effect of ZnO additive on sintering behavior and microwave dielectric properties of $0.95MgTiO_3$ - $0.05CaTiO_3$ ceramics," *Journal of Alloys and Compounds*, (2008) 359–363.
- [13] R. E. Smallman and R. J. Bishop, *Metalurgi Fisika Modern & Rekayasa Material*, 6th ed. Jakarta: Erlangga, (2003).
- [14] S. Pratapa, *Analisis Data Difraksi Menggunakan Metode Rietveld*. Surabaya, (2009).