

# Sintesis $Zn_{0.2}Mg_{0.8}TiO_3$ pada Temperatur $510^\circ C$ dan $800^\circ C$ Menggunakan Metode Pencampuran Larutan

Chairatul Umamah dan Suminar Pratapa  
Jurusan Fisika, FMIPA, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)  
Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111  
E-mail: Suminar\_Pratapa@Physics.its.ac.id

**Abstrak**—Sintesis serbuk larutan padat  $Zn_{0.2}Mg_{0.8}TiO_3$  (ZMT0.2) dilakukan dengan menggunakan metode pencampuran larutan. Bahan dasar yang digunakan dalam sintesis adalah serbuk Mg dan Ti, sedangkan Zn digunakan sebagai bahan aditif. Larutan padat dibuat dengan melarutkan masing-masing serbuk Mg, Zn, dan Ti ke dalam HCl 37%. ketiga larutan dicampur dan diaduk selama 4 jam dan dipanaskan pada temperatur  $110^\circ C$  dan dilanjutkan dengan proses kalsinasi pada temperatur  $510^\circ C$  dan  $800^\circ C$  selama  $\frac{1}{2}$  jam hingga terbentuk serbuk ZMT0.2 *solid solution*. Dari analisis data difraksi sinar-x (XRD) diperoleh bahwa pada ZMT0.2 menghasilkan fasa ZMT0.2 dan rutil. Hasil analisis lanjut dengan *Rietica* diperoleh Nilai fraksi berat MT dan rutil pada sampel ZMT0.2  $510^\circ C$  adalah 87.5% dan 12.5%. Pada sampel ZMT0.2  $800^\circ C$  nilai fraksi berat MT dan rutil adalah 90.3% dan 9.7%. Analisis lanjut untuk estimasi ukuran kristal dilakukan menggunakan MAUD. Sampel ZMT0.2  $510^\circ C$  memiliki ukuran kristal MT 18 nm dan rutil 10 nm sedangkan sampel ZMT0.2  $800^\circ C$  memiliki ukuran kristal MT 416 nm dan rutil 112 nm.

**Kata Kunci**—larutan padat, analisis Rietveld, komposisi fasa, ukuran kristal.

## I. PENDAHULUAN

PADA perkembangan sains dan teknologi nano material, metode yang sederhana dan produktif dalam sintesis nanokristal keramik sangat menarik dipelajari [1]. Hingga saat ini telah dikenal berbagai jenis cara sintesis yang dilakukan seperti metode *solid state reaction* [2] dan metode pencampuran larutan. Salah satu pengembangan sintesis metode pencampuran larutan adalah sintesis pada Magnesium Titanat (MT) dengan dopan Zn sehingga membentuk larutan padat ZMT0.2 seperti yang pernah dilakukan sebelumnya [3]. Penambahan Zn pada  $MgTiO_3$  juga dapat menurunkan suhu kalsinasi karena Zn berperan sebagai katalisator yang memiliki energi aktivasi yang rendah untuk terjadinya reaksi [4].

Penelitian ini melaporkan hasil analisis lanjut data XRD yang telah didapatkan sebelumnya [3] khususnya untuk ZMT0.2 terkait dengan komposisi fasa dan estimasi nilai ukuran kristal. Analisis yang digunakan adalah metode *Rietveld* dengan perangkat lunak *Rietica* [5] dan MAUD [6].

## II. METODOLOGI PENELITIAN

Bahan dasar yang digunakan dalam sintesis adalah serbuk Mg dan Ti, sedangkan Zn digunakan sebagai bahan aditif.

Prosedur penelitian mengikuti yang telah dilaporkan sebelumnya [3]. Larutan padat dibuat dengan melarutkan masing-masing serbuk Mg, Zn, dan Ti ke dalam HCl 37%. Selanjutnya ketiga larutan tersebut dicampur sehingga warna larutan hasil campuran tersebut terbentuk warna ungu kehitaman. Larutan yang dicampur tersebut diaduk menggunakan *magnetic stirrer* tanpa pemanasan selama 4 jam, sehingga didapatkan larutan yang homogen. Selanjutnya, larutan tersebut dikeringkan pada suhu  $110^\circ C$  sampai mengerak di dasar gelas dengan warna putih keunguan. Kemudian, kerak tersebut digerus dengan mortar selama 30 menit sehingga diperoleh sampel serbuk hasil pengeringan. Selanjutnya serbuk ZMT0.2 dikalsinasi pada temperatur  $510^\circ C$  dan  $800^\circ C$  selama  $\frac{1}{2}$  jam untuk mendapatkan sampel yang diharapkan, yaitu larutan padat ZMT0.2. Untuk karakterisasi fasa digunakan XRD dengan radiasi  $\lambda_{CuK\alpha}=1,5418 \text{ \AA}$  dan analisis lanjut menggunakan *Rietica* dan MAUD.

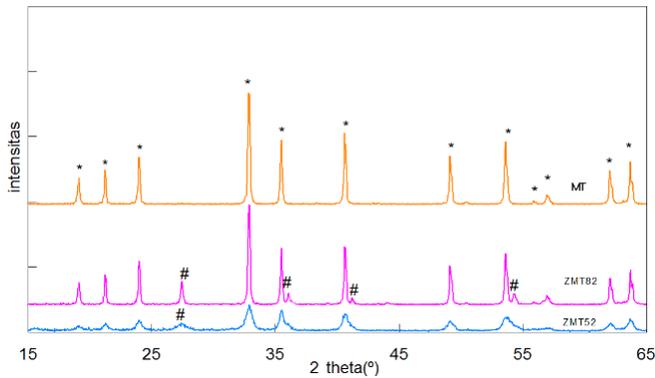
Metode yang digunakan untuk menganalisis komposisi fasa adalah metode 'ZMV' relatif dengan menggunakan persamaan perhitungan fraksi berat relatif [7]:

$$W_i = \frac{s_i(ZMV)_i}{\sum_{k=1}^n s_k(ZMV)_k} \quad (1)$$

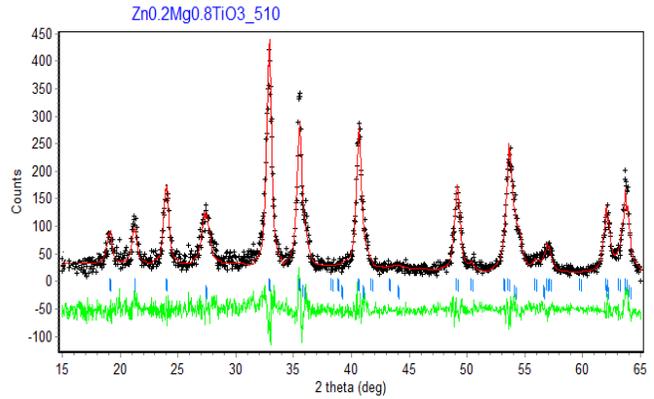
dengan  $W_i$  fraksi berat relatif fasa  $i$  (%),  $s$  faktor skala Rietveld,  $Z$  adalah jumlah rumus kimia dalam sel satuan,  $M$  adalah berat fasa dan  $V$  adalah volume sel satuan.

## III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 1 menunjukkan pola-pola XRD ZMT0.2  $510^\circ C$  dan  $800^\circ C$ . Terlihat bahwa fasa-fasa yang terbentuk adalah MT dan rutil saja. Sebagai pembandingan ditunjukkan pola XRD untuk sampel MT  $800^\circ C$  (tanpa aditif Zn) yang hanya mengandung fasa MT. Pada sampel-sampel ZMT, tidak adanya fasa individual yang mengandung Zn seperti Zn, ZnO,  $ZnCl_2$  pada hasil uji XRD menandakan bahwa Zn (0.074 nm) telah mensubstitusi Mg (0.072 nm) sehingga terbentuk serbuk larutan padat ZMT0.2. Selain itu, puncak-puncak MT lebih mendominasi dibandingkan dengan rutil. Secara kualitatif hal ini menandakan banyaknya kandungan larutan padat ZMT dibandingkan rutil, namun untuk lebih rinci dilakukan analisis komposisi, dalam penelitian digunakan *Rietica* [5].



Gambar. 1. Pola difraksi sinar-x data FD dari sampel  $Zn_{0.2}Mg_{0.8}TiO_3$  510°C dan 800°C selama ½ jam dan sampel MT yang dikalsinasi pada temperatur 800°C selama 1 jam. Ket: =\*MT dan #=Rutil .



Gambar. 2. Pola hasil penghalusan sampel  $Zn_{0.2}Mg_{0.8}TiO_3$  dengan kode ZMT52, menggunakan metode *Rietveld* . Pola difraksi terukur digambarkan dengan tanda (+ + +) warna hitam dan pola difraksi terhitung digambarkan dengan garis lurus warna merah. Kurva warna hijau paling bawah adalah plot selisih antara pola difraksi terukur dengan pola difraksi terhitung. Garis-garis tegak menyatakan posisi-posisi puncak.

Contoh plot hasil penghalusan dengan *Rietica* diilustrasikan pada Gambar 2 yang menunjukkan bahwa plot selisih antara pola terhitung dan pola terukur memiliki fluktuatif yang relatif kecil. Sedangkan tingkat kesesuaian pencocokan disajikan pada Tabel 1.

Secara umum, pencocokan (*fitting*) dengan metode *Rietveld* bisa dinyatakan selesai mengikuti dua kriteria utama yaitu plot selisih antara pola terhitung dan pola terukur memiliki perbedaan yang relatif kecil yang hanya dapat dilihat secara visual tidak dapat dikuantisasi.

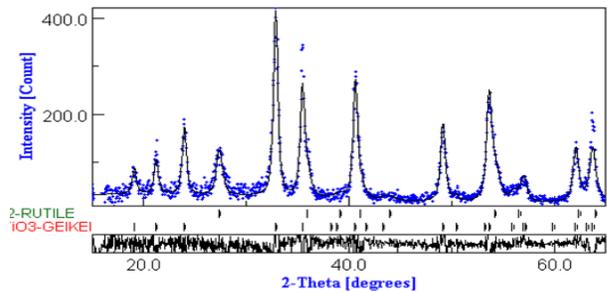
Tabel 1 menunjukkan bahwa hasil analisis penghalusan yang dilakukan pada semua sampel dengan mode FD dapat dinyatakan *acceptable* atau diterima karena nilai *GoF* (*good of fitness*) < 4% [5]. Dengan *FoM* yang *acceptatable* dan *difference plot* yang tidak fluktuatif, hasil penghalusan dapat digunakan untuk menentukan fraksi berat relatif fasa yang bisa diperoleh dari keluaran *Rietica* hasil penghalusan. Fraksi berat relatif fasa MT pada ZMT82 lebih besar dari ZMT52, tetapi pada fasa rutil fraksi berat relatif ZMT82 lebih kecil dari ZMT52.

Selanjutnya, penentuan ukuran kristal dilakukan dengan *MAUD* memanfaatkan fungsi bentuk puncak *Pseudo-Voigt* [8] sehingga menghasilkan plot grafik seperti pada Gambar 3. Penghalusan dengan menggunakan *MAUD* mendapatkan hasil yang cukup baik. Pada Gambar 3 terlihat bahwa antara pola difraksi data terhitung dan terukur menunjukkan kecocokan yang cukup baik yang ditunjukkan tidak terlalu signifikannya selisih antara keduanya.

Tabel 2 menunjukkan hasil analisis penghalusan dengan *MAUD* yang dilakukan pada sampel dapat dinyatakan *acceptable* atau diterima karena nilai sig < 2%. Pemanfaatan *MAUD* untuk analisis ukuran kristal diyakini memiliki akurasi yang cukup baik terhadap ukuran mikroskopi elektron [9]. Tabel 2 menunjukkan bahwa nilai ukuran kristal pada sampel ZMT0.2 yang dikalsinasi pada temperatur 510°C memiliki nilai ukuran kristal yang lebih kecil (18 nm) dibandingkan sampel pada ZMT0.2 yang dikalsinasi pada temperatur 800°C (416 nm). Jika ukuran kristal diasumsikan setara dengan ukuran butir, maka perbedaan nilai ukuran tersebut dapat dijelaskan karena terjadi difusi atom sehingga atom-atom

Tabel 1. Nilai *FoM* dan fraksi berat hasil penghalusan *Rietica*

sampel	Figures-Of-Merit			Fraksi berat	
	Rp(%)	Rwp(%)	GoF	MT	Rutil
MT80	11.5	19.7	2.0	100	0
ZMT52	15.5	20.9	2.5	87.5	12.5
ZMT82	11.4	20.4	2.0	90.3	9.7



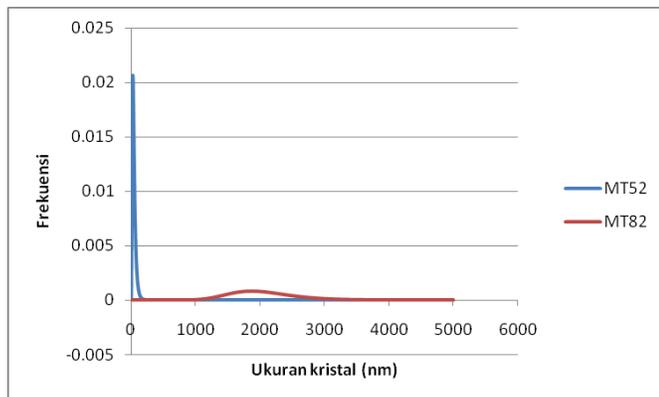
Gambar 3 Plot hasil penghalusan *MAUD* kode sampel ZMT52 selama ½ jam. Pola difraksi terukur pada gambar 3 digambarkan dengan tanda (+ + +) warna biru dan pola difraksi terhitung digambarkan dengan garis lurus warna hitam. Kurva paling bawah adalah plot selisih antara pola difraksi terukur dengan pola difraksi terukur.

bergerak melewati batas butir yang menyebabkan perluasan daerah persinggungan antar kristal yang akan memperbesar ukuran butir ( $D_v = D$ ). Ukuran butir yang semakin besar berpengaruh terhadap bentuk dan ukuran kristal [10].

Grafik distribusi pada Gambar 4 hasil analisis *MAUD* dari keluaran (*result*) mengindikasikan bahwa lebar kurva distribusi pada sampel ZMT0.2 510°C yang terbentuk memiliki ukuran yang relatif kecil (18 nm) dengan distribusi ukuran kristal yang lebih homogen dibandingkan pada ZMT0.2 800°C.

Tabel 2.  
Nilai FoM dan ukuran kristal hasil penghalusan MAUD

sampel	Figures-Of-Merit			Ukuran Kristal	
	Sig	R <sub>w</sub> (%)	R <sub>b</sub> (%)	MT	Rutil
MT80	1.6	22.7	15.2	359(14)	-
ZMT52	1.3	20.7	15.4	18(12)	10(1)
ZMT82	1.6	23.4	14.4	416(11)	112(11)



Gambar 4 Distribusi fasa MT pada sampel ZMT0.2 yang disintesis pada temperatur 510°C dan 800°C selama ½ jam.

#### IV. KESIMPULAN

Pada penelitian ini, sintesis ZMT0.2 menghasilkan fasa ZMT yang relatif tinggi dan fasa rutil yang relatif kecil. Fraksi berat MT tertinggi yang dihasilkan pada ZMT0.2 dengan temperatur kalsinasi 800°C sebesar 90,3%. Pada ZMT0.2 510°C ZMT yang terbentuk memiliki ukuran kristal antara 18 nm, dengan distribusi ukuran yang relatif lebih homogen dibandingkan sampel yang dikalsinasi pada temperatur 800°C.

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Bapak Malik A. Baqiya atas inisiasi penelitian ZMT melalui Hibah Penelitian PHKI Tema B Tahun Anggaran 2010 dengan Kontrak Kegiatan No. 06922/II.38/B/PL/2010.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] S. Tata, *Pengetahuan Bahan Teknik*, Jakarta, Erlangga (2000) 153-156.
- [2] B. Tang, S. Zhang, X. Zhou and S. Yu, "Preparation of pure MgTiO<sub>3</sub> powders and the effect of the ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> doped onto property of MgTiO<sub>3</sub> based ceramics," *Journal of Alloys and Compounds*, Vol.492 (2009, March.) 461-465.
- [3] Istianah, "Studi Struktur Mikro Serbuk Larutan Padat M<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> (M = Zn, Ni) Hasil Pencampuran Basah" Tesis, Jurusan Fisika, FMIPA ITS, Surabaya (2011).
- [4] P. Astutik, "Karakterisasi Struktur Larutan Padat Me-MgTiO<sub>3</sub> (Me = Zn, Mn) Hasil Pencampuran Serbuk" Tesis, Jurusan Fisika., FMIPA ITS, Surabaya (2011).
- [5] B. A. Hunter, "Commission on Powder Diffraction". In newsletter of International Union of Crystallography, Sydney (1998) 20.
- [6] L. Lutteroti. (2009, March). *MAUD-Material Analysis using Diffraction*. Available : <http://www.ing.unitn.it/~maud>
- [7] R. J. Hill and C. J. Howard, "Quantitative phase analysis from neutron powder diffraction data using the Rietveld method" *J.Appl. Cryst* , Vol. 20 (1987) 467-474.
- [8] S. Pratapa, L.Susanti, M.A Baqiya, S. Purwaningsih "Perbandingan Penghalusan Pola Difraksi Sinar-x Menggunakan Rietica dan MAUD: Kasus Serbuk Yitria Nanokristal." *Seminar Fisika dan Aplikasinya*, Surabaya (2009).
- [9] S. Pratapa, L.Susanti, Y. A. S. Insany, Z. Alfiati, B. Hartono, Mashuri, Ahmad Taufiq, Abdullah Fuad, Triwikantoro, M.A Baqiya, S. Purwaningsih, E. Yahya, dan Darminto, "XRD line-broadening characteristics of M-oxides (M = Mg, Mg-Al, Y, Fe) nanoparticles produced by coprecipitation method," *In proc. 4th Annu. Nanoscience and Nanotechnology*, Surabaya (2010).
- [10] P. Darmawan, "Efek Pengadukan dan Variasi pH pada Sintesis Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dari Pasir Besi dengan Metode Koopresipitasi" Tugas Akhir, Jurusan Fisika, FMIPA ITS, Surabaya (2011).