

Sintering Material $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ Variasi Penambahan V_2O_5 dengan Metode Reaksi Padat

Riska Ainun Nisa dan Suasmoro

Jurusan Fisika, Fakultas MIPA Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111

E-mail: riska.nisa11@mhs.physics.its.ac.id

Abstrak— Telah dilakukan percobaan pembuatan keramik Zinc Titanate ($ZnTiO_3$) dengan menambahkan dopan V_2O_5 sebagai bahan cair yang berfungsi untuk menurunkan suhu sintering sampai suhu dibawah $1000^\circ C$. Pembuatan bahan keramik $ZnTiO_3$ dilakukan dengan metode reaksi padat (Solid State). Proses pencampuran bahan menggunakan ballmill. Selanjutnya sampel tersebut di kalsinasi pada suhu $850^\circ C$ dengan waktu penahanan 2 jam, dicetak menjadi pelet disk dan disinter pada suhu $900^\circ C$ selama 24h. Dari data keseluruhan, variasi waktu sintering tidak menunjukkan perubahan nilai densitas yang mencolok. Namun variasi penambahan zat aditif V_2O_5 menunjukkan bahwa semakin banyak V_2O_5 yang ditambahkan kedalam material, menghasilkan nilai densitas semakin tinggi. Namun sampel dengan variasi suhu $900^\circ C$ memiliki nilai densifikasi yang paling baik karena waktu penahanan yang paling lama yaitu 24h. Material yang memiliki waktu penahanan yang paling lama dan densitas paling besar yang memiliki konstanta dielektrik yang paling baik. Didapatkan nilai konstanta dielektrik untuk masing masing sampel ZMT3 $900^\circ C$ murni, 1%24h, 2%24h, dan 4%24h berturut-turut yaitu memiliki nilai permitivitas relativitas (ϵ_r) sebesar 14,5; 23,8; 23,4; 26,8. Hal ini dapat terjadi, diduga karena dengan keadaan sampel yang mempunyai densitas tinggi maka didalamnya hanya terdapat sedikit close pore.

Kata kunci: densitas, dielektrik, komposisi, zinc titanate.

I. PENDAHULUAN

Perkembangan penggunaan bahan keramik sangat signifikan karena bahan keramik merupakan material yang memiliki karakteristik kapasitas panas yang baik, konduktivitas panas rendah, tahan korosi, sifat listriknya dapat insulator, semikonduktor, sifat magnetiknya dapat magnetik dan non-magnetik, sifat mekaniknya keras dan kuat yang memungkinkan digunakan untuk beberapa aplikasi elektronika lainnya⁽²⁾. Salah satu material keramik yang menarik adalah Zinc Titanate ($ZnTiO_3$) yang dimanfaatkan sebagai chip kapasitor kompensasi temperatur, resonator, filter, antena komunikasi, radar dan satelit *broadcasting*

$ZnTiO_3$ merupakan salah satu contoh bahan keramik yang memiliki aplikasi yang sangat luas karena memiliki konstanta dielektrik yang tinggi⁽⁴⁾. Beberapa metode yang dilakukan untuk menghasilkan $ZnTiO_3$ salah satunya adalah *solid state reaction method*. Para peneliti berhasil mensintesis $ZnTiO_3$ dalam bentuk serbuk maupun padatan pada suhu yang relatif tinggi yaitu $1000^\circ C$.

Pencampuran larutan merupakan suatu metode pencampuran larutan prekursor logam yang diikuti dengan kalsinasi pada temperatur tertentu untuk mendapatkan senyawa

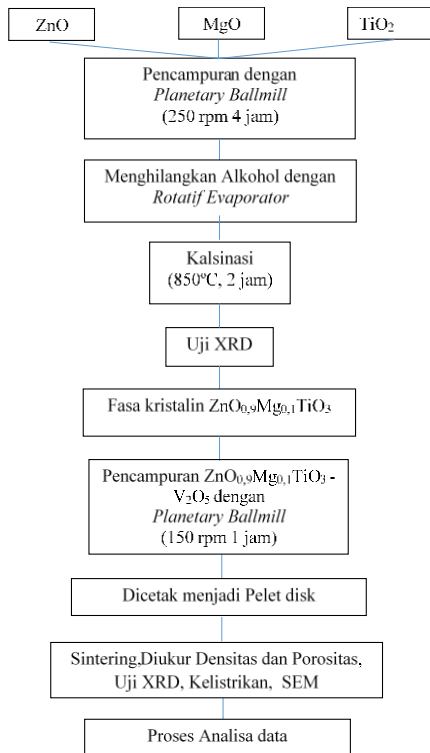
oksida dari unsur penyusunnya. Beberapa penelitian sudah menggunakan metode pencampuran larutan seperti yang dilakukan oleh Ming-Liang Hsieh pada tahun 2008 dengan komposisi $(Zn_x Mg_{1-x})TiO_3$ ($x = 0, 0.1$ and 0.2). Dari penelitian tersebut terbukti metode pencampuran larutan lebih efisien dengan menghasilkan suhu sinter yang rendah dan tingkat kemurnian yang tinggi⁽¹⁾.

Solid State Reaction merupakan salah satu metode pencampuran serbuk dalam bentuk padatan. Proses pencampuran ini menggunakan *ballmill* yang berfungsi untuk mencampur dan menggiling serbuk. Pada proses *ball mill* dapat memberikan *impact* yang besar pada sampel karena akselerasi yang tinggi antara bola yang digunakan sebagai penggiling dengan sampel⁽³⁾.

Pada penelitian ini akan dilakukan sintesis $ZnTiO_3$ dengan dopan Mg menggunakan metode solid state reaction. Prekursor yang dihasilkan akan dikalsinasi pada suhu $850^\circ C$ sehingga menghasilkan serbuk larutan $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ berukuran nanokristal dengan kemurnian yang tinggi. Lalu $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ yang telah dikalsinasi akan didoping dengan V_2O_5 untuk mengetahui sifat listrik. Karakterisasi dilakukan dengan menggunakan beberapa pengujian yaitu Differential Scanning Calorimeter-Thermal Gravimetric Analyzer (DSC-TGA), X-Ray Diffractometer (XRD) dan dianalisis dengan menggunakan perangkat lunak Match dan reitica yang bertujuan untuk identifikasi fasa dan komposisi fasa yang terbentuk di dalam sampel dan pengujian SEM

II. METODE

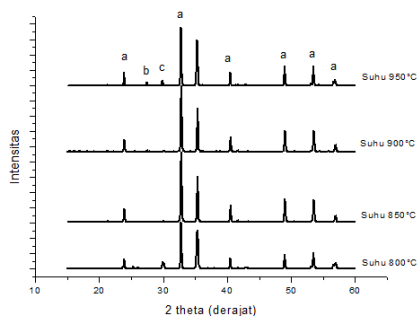
Material yang akan disintesis adalah bahan keramik ZMT ($Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$) dengan perbandingan mol: $0,9ZnO-0,1MgO$. Metode yang digunakan untuk menyintesis ZMT adalah metode reaksi padat. Secara lebih rinci dapat dilihat pada diagram alir pada gambar berikut:



Gambar 2.1. Diagram alir percobaan ZMT3

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Sampel $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ disintesis dengan metode *Solid State* dimana metode ini merupakan salah satu pencampuran serbuk dalam bentuk padatan. Kemurnian bahan material dasar diketahui memiliki kemurnian sebagai berikut ZnO (>99%, Merck), MgO (>88%, Merck), TiO (>98%, Merck). Proses pencampuran ini menggunakan *ballmill* dengan frekuensi putar 250 rpm selama 4 jam. Selanjutnya dilakukan analisa difraksi sinar-x seluruh sampel yang telah di kalsinasi pada beberapa suhu selama 2 jam. Fase bubuk yang telah dikalsinasi dianalisis dengan menggunakan X-ray difraktometer (Model X1, Scintag, USA) dengan menggunakan Cu Ka dan menggunakan sudut kecil antara 20° - 60° yang untuk mengetahui identifikasi fasa dari bahan tersebut ditunjukkan pada Gambar 4.1:



Gambar 3. 1 Pola difraksi sinar-x dari sampel ZMT3 yang telah dikalsinasi (ket: a = $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$, b = TiO_2 , c = Zn_2TiO_4)

Gambar 3.1 menunjukkan beberapa suhu kalsinasi yang dilakukan untuk mencapai *single phase*. Identifikasi fasa pola difraksi sinar X dilakukan dengan perangkat lunak *Match2*. Dari berbagai suhu yang telah di kalsinasi, sintesis $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ telah *single phase* pada suhu $850^{\circ}C$. Dari data hasil analisa kualitatif dan kuantitatif fasa yang teridentifikasi yaitu $ZnTiO_3$ (illminate) berbentuk hexagonal dengan *space group* R-3 (148), puncak tertinggi $ZnTiO_3$ berada pada sudut $32,82^{\circ}$ dengan intensitas puncak sebesar 998,1. Sedangkan $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ yang dikalsinasi $900^{\circ}C$ dan $950^{\circ}C$ sudah mulai terurai menjadi fasa lain, fasa-fasa yang teridentifikasi dari hasil match tersebut yaitu $ZnTiO_3$ (illminate), TiO_2 (rutile) dan Zn_2TiO_4 .

Analisis *Rietveld* menggunakan perangkat lunak *rietica* pada fasa tunggal $(Zn,Mg)TiO_3$ dengan suhu kalsinasi $850^{\circ}C$, diketahui bahwa parameter kisi yang terukur adalah $a = b = 5,069 \text{ \AA}$ dan $c = 13,912 \text{ \AA}$. Hasil ini menunjukkan terjadi perbedaan dengan yang dilaporkan oleh Ming-Liang Hsieh, *et al.* (2008) bahwa parameter kisi dari $ZnTiO_3$ adalah $a = b = 5,0787 \text{ \AA}$ dan $c = 13,9271 \text{ \AA}$. Perbedaan tersebut menunjukkan bahwa terbentuknya $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ dengan sumbu a dan b berkurang panjang $0,00148 \text{ \AA}$ akibat substitusi 10% posisi Zn^{2+} berjari atom $0,074 \text{ \AA}$ digantikan Mg^{2+} berjari atom $0,072 \text{ \AA}$. Untuk ZnO-MgO-TiO₂ campuran, karena jari-jari ionik Mg^{2+} ($0,072 \text{ \AA}$) lebih kecil dibandingkan dengan jari-jari Zn^{2+} ($0,074 \text{ \AA}$), *Magnesium* dengan mudah mengganti *Zincite* dan membentuk larutan padat $(Zn,Mg)TiO_3$ ⁽¹⁾.

Dari hasil analisa data yang di dapatkan, data densitas yang dihasilkan menyatakan kecenderungan tertentu. Densitas menyatakan kerapatan partikel di dalam sampel. Dengan perhitungan sederhana melalui perbandingan masa dan volume didapatkan densitas sampel. Densitas sampel ini bisa dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti proses kompaksi dan proses sintering. Proses kompaksi menyebabkan terjadinya pemadatan atau pengikatan sementara secara mekanik antara butiran partikel menjadi suatu masa yang kompak. Pada proses sintering suhu dan waktu penahanan $900^{\circ}C$ dengan waktu penahanan 24 jam. Pada saat inilah terjadi eliminasi porositas dengan transport masa. Jika dua partikel digabung dan dipanaskan pada suhu tertentu maka dua partikel ini berikat membentuk *neck*. Hal inilah yang menyebabkan sampel $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ semakin kompak dan densitasnya semakin meningkat.

Selanjutnya dari hasil pengukuran bulk density diperoleh data bahwa semakin tinggi suhu sintering dan waktu penahanan maka nilai bulk density semakin tinggi dan nilai porositas semakin kecil. Karena semakin tinggi suhu sintering maka nilai kepadatan suatu material semakin padat karena kerapatan bahan semakin rapat dan mengurangi daya pori yang dihasilkan sehingga nilai porositasnya semakin kecil. Hal ini dikarenakan pada proses sinter, partikel-partikel berikatan satu dan yang lain secara kimia di batas butir dan membentuk leher (*liquid bridge*) sehingga ikatan antarpartikel meningkat dan terjadi peningkatan densitas.

Selain suhu sinter lama waktu penahanan juga berpengaruh terhadap nilai densitas suatu material. Semakin lama waktu penahanan suhu sinter (*holding time*) maka densitas naik, hal ini disebabkan dengan lamanya *holding time* akan memberikan waktu untuk terbenruknya ikatan antar partikel yang semakin kuat sehingga berpengaruh terhadap

berkurangnya porositas yang mengakibatkan nilai densitas meningkat. Peranan fasa cair yaitu V_2O_5 juga sangat terlihat dalam mereduksi porositas material. Pada proses sinter fasa cair dikenal dengan tahapan pelarutan dan pengendapan. Pada tahap ini, butir-butir berukuran kecil larut dalam fasa cair, bermigrasi dan kemudian mengendap di permukaan butir yang berukuran besar (Rahman,2003). Sehingga dalam proses sintering meskipun porositas dapat direduksi lebih cepat namun ukuran butir akan tumbuh lebih cepat dibandingkan dengan sampel tanpa penambahan zat aditif. Namun pada tabel diatas, sinter pada suhu 900°C memiliki data densitas yang paling baik. Hal ini disebabkan karena perbedaan lama holding time yang terjadi sehingga lamanya hoding time pada suhu 900°C memberikan waktu untuk terbentuknya ikatan antar partikel yang semakin kuat sehingga berpengaruh terhadap berkurangnya porositas yang mengakibatkan nilai densitas meningkat.

Pengukuran sifat dielektrik sampel dalam penelitian $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ dilakukan pada temperatur kamar dengan rentang frekuensi antara 32 MHz hingga 1 Hz sehingga dari pengukuran ini dapat diketahui pada frekuensi berapa terjadi perubahan polarisasi dipolar ke polarisasi *space charge*. Karakterisasi sifat dielektrik yang dilaporkan dari hasil perhitungan ialah permitivitas real (ϵ_r).

Konstanta dielektrik hasil pengukuran dengan Impedance analyzer menunjukkan bahwa pada daerah polarisasi dipolar terlihat bahwa nilai konstanta dielektrik linier terhadap data densitas. Akibatnya densitas yang kecil memiliki nilai permitivitas yang rendah, begitu juga sebaliknya densitas sampel yang besar memiliki nilai permitivitas yang besar pula. Dimana ketika proses sintering tersebut terjadi pengurangan porositas yang besar sehingga dapat meningkatkan nilai densitas. Peningkatan densitas menyebabkan peningkatan polarisasi dipolar sehingga nilai permitivitas relative juga tinggi. Pada sintesis ini material yang memiliki waktu penahanan yang paling lama dan densitas paling besar. Didapatkan nilai konstanta dielektrik untuk masing masing sampel ZMT3 900°C murni, 1%24h, 2%24h, dan 4%24h berturut-turut yaitu memiliki nilai permitivitas relativitas (ϵ_r) sebesar 14,5; 23,8; 23,4; 26,8. Hal ini dapat terjadi, diduga karena dengan keadaan sampel yang mempunyai densitas tinggi akibat dari pendopingan V_2O_5 atom V mengganti Ti yang menyebabkan parameter kisi menyusut dibandingkan dengan material yang tanpa doping sehingga volume semakin kecil dan atom-atom semakin rapat sehingga nilai densitas meningkat dan nilai permitivitas relative juga akan semakin meningkat.

Selain itu, material $(Zn_{1-x}Mg_x)TiO_3$ disinter pada suhu 900°C memiliki nilai permitivitas relatif tinggi disebabkan densifikasi lebih lengkap. Selain densifikasi lebih lengkap, pembentukan TiO_2 oleh dekomposisi fase $ZnTiO_3$ menghasilkan lebih tinggi permitivitas relatif. Karena permitivitas relatif TiO_2 ($\epsilon_r = 104$) jauh lebih tinggi daripada $ZnTiO_3$ ($\epsilon_r = 19$), keberadaan sejumlah kecil TiO_2 dapat dengan signifikan meningkatkan permitivitas relatif dari material ZMT3. Ketika MZT3 diberi medan listrik, timbullah polarisasi dipolar. Polarisasi dipolar terjadi akibat adanya interaksi atom Zn dan Ti yang terjadi dimana atom Zn bermuatan $2+$ dan atom Ti bermuatan $4+$. Ketika frekuensi medan semakin tinggi polarisasi dipolar akan berubah menjadi

polarisasi *space charge*. Polarisasi *space charge* terjadi pada muatan listrik yang tidak terikat yaitu pada batas butir (*grain boundry*) dan ruang kosong (*cavity*).

IV. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil pengukuran, pengolahan data, analisa data dan pembahasan dapat diperoleh beberapa kesimpulan penelitian, yakni:

1. Sintesis $Zn_{0,9}Mg_{0,1}TiO_3$ telah *single face* pada suhu 850°C . Dari data hasil analisa kualitatif dan kuantitatif fasa yang teridentifikasi yaitu $ZnTiO_3$ (*illminate*) berbentuk hexagonal dengan *space group* R-3 (148), puncak tertinggi $ZnTiO_3$ berada pada sudut $32,82^\circ$.
2. Sampel dengan variasi suhu 900°C memiliki nilai densifikasi yang paling baik karena waktu penahanan yang paling lama yaitu 24h karena memberikan waktu untuk terbentuknya ikatan antar partikel yang semakin kuat sehingga berpengaruh terhadap berkurangnya porositas yang mengakibatkan nilai densitas meningkat.
3. Nilai konstanta dielektrik untuk masing masing sampel ZMT3 900°C murni, 1%24h, 2%24h, dan 4%24h berturut-turut yaitu memiliki nilai permitivitas relativitas (ϵ_r) sebesar 14,5; 23,8; 23,4; 26,8. Hal ini dapat terjadi, diduga karena dengan keadaan sampel yang mempunyai densitas tinggi maka didalamnya hanya terdapat sedikit porositas.

UCAPAN TERIMA KASIH

“Penulis Riska Ainun Nisa mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada Prof Suasmoro sebagai Dosen Pembimbing Tugas Akhir yang telah banyak membantu kami selama pengambilan data dan penyusunan laporan”

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Hsieh, M.-L. C.-S.-C.-P.-L. (2008). Effect of oxide additives on the low-temperature sintering of dielectrics $(Zn,Mg)TiO_3$. *Materials Research Bulletin*, 43.
- [2] Ismunandar. 2008. “Artikel-artikel Populer Keramik”
- [3] Schilz, J. (1998), “Internal Kinetics of Tumbles dan Planetary Ball Mills: A Mathematical Model for Parameter setting”, *Material Transactions, JIM*, vol, 39, hal. 1152-1157.
- [4] Yu You-Hua, dan Xia Meng, (2012) “Preparation and characterization of $ZnTiO_3$ powder by sol-gel process”. *Materials Research Bulletin*, 77, 10-12.
- [5] Yuh-Ruey W, Sea-Fue W, et al., 2005. Low Temperature Sintering of $(Zn_{1-x}, Mg_x)TiO_3$ Microwave Dielectrics. *Ceramic International* 31, 905-909