

Pencampuran dengan Attritor mill pada Sintesis $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$

Sefrilita Risqi Adikaning Rani dan S. Suasmoro

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

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

e-mail: suasm@its.ac.id

Abstrak—Material $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ disintesis menggunakan metode pencampuran attritor dengan variasi waktu milling 2 jam, 4 jam dan 6 jam. Hasil pencampuran dengan attritor menghasilkan distribusi ukuran serbuk dalam orde submikronik. Keseragaman distribusi ukuran serbuk yang tinggi diperoleh dari serbuk hasil milling selama 6 jam yaitu sebesar 351,6 nm. Kalsinasi pada temperatur 950°C untuk serbuk campuran yang dimilling 6 jam memperlihatkan terbentuknya fasa tunggal dari $(Mg/Zn)TiO_3$. Analisa dilakukan dengan menggunakan software match2.

Kata Kunci—Attritor, $(Mg/Zn)TiO_3$, milling.

I. PENDAHULUAN

APLIKASI teknologi mengalami peningkatan pesat ditandai dengan hasil penemuan teknologi komunikasi yang berbasis gelombang mikro. Aplikasi tersebut dikembangkan pada teknologi komunikasi seperti sistem telepon seluler, radar, GPS, dan antena. Selain itu, juga diterapkan pada multilayer kapasitor[1]. Agar dapat bekerja pada gelombang mikro perangkat-perangkat tersebut harus memenuhi beberapa spesifikasi yaitu memiliki nilai konstanta dielektrik (ϵ_r) yang tinggi, sehingga mampu diminiaturisasi komponennya. Selain itu, perangkat tersebut harus juga memiliki nilai faktor kualitas (Q_f) yang tinggi agar mampu meningkatkan rasio frekuensi terhadap *noise*. Selanjutnya, perangkat harus memiliki nilai koefisien temperature (σ_f) pada frekuensi resonansi rendah sebagai penentu stabilitas frekuensi transmisi. Salah satu material yang cocok untuk memenuhi spesifikasi tersebut salah satunya yaitu material $MgTiO_3$ [2].

Magnesium titanat ($MgTiO_3$) adalah bahan dengan struktur *ilmenite* yang tersusun dalam *Hexagonal Close Packing* (HCP) [3]. Dilaporkan dari penelitian Ullah (2015) $MgTiO_3$ memiliki konstanta dielektrik $\epsilon_r \sim 17$, koefisien temperature $\tau_f = -55$ ppm/°C dan mendekati nol, dan nilai factor quality $Q_{xf} \sim 160.000$ [4]. Magnesium titanat ($MgTiO_3$) dapat disintesis dengan menggunakan berapa metode. Metode untuk sintesis $MgTiO_3$ diantaranya yaitu sol gel [5];[6], metode kopresipitasi [7]; [8], metode *wet chemical peroxide route* [9], metode *solid state* [10]; [11]; dan pencampuran basah (*wet mixing*)[1] [12] [13]. Metode yang paling sering dan paling mudah digunakan adalah metode *solid state reaction*.

Sintesis dengan menggunakan metode *solid state* dapat dilakukan dengan menggunakan proses mekanik. Proses mekanik suatu proses yang membantu penghancuran partikel

menjadi pertikel dengan ukuran yang lebih kecil. Proses penghancuran tersebut dilakukan tanpa mengurangi komponen penyusun dari padatan. Proses ini dapat dilakukan dengan menggunakan alat bantu milling seperti *attritor mill* [14]. Attritor mill bekerja dengan prinsip mekanik yang dibantu dengan bola-bola berdiameter kecil. Mampu bekerja dalam range kecepatan 100-1500rpm. Besarnya energi mekanik yang diberikan mampu menimbulkan percepatan pada bola dan gesekan antar bola dan serbuk didalamnya. Energi tumbukan besar dengan menggunakan bola dengan diameter kecil dapat memproduksi serbuk dengan distribusi serbuk yang merata secara optimum[15].

Mengingat kelebihan dari alat *attritor mill*, Sintesis $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ pada penelitian ini dilakukan dengan menggunakan alat milling *attritor mill*. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui efektifitas metode pencampuran dengan *attritor mill* tanpa mengurangi sifat dan karakteristik dari $(Mg/Zn)TiO_3$. Diharapkan pada penelitian ini $(Mg/Zn)TiO_3$ dapat dibuat dengan mudah dengan menggunakan metode pencampuran dengan attritor.

II. METODE PENELITIAN

Material dielektrik $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$ (MZT) disintesis dengan menggunakan metode reaksi padat. Metode reaksi padat dilakukan dengan cara mencampurkan langsung dari oksida bahan. Bahan yang diperlukan pada sintesis ini antara lain; serbuk MgO, serbuk ZnO, serbuk TiO_2 dan alkohol 96%. Perhitungan dilakukan untuk mencapai stoikiometri $Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO_3$. Masing-masing serbuk diberikan perlakuan. Untuk serbuk ZnO dan TiO_2 dipanaskan 120°C. Karena MgO sifatnya higroskopis maka serbuk MgO dipanaskan pada temperatur 600°C. MgO, ZnO dan TiO_2 dicampur dengan menggunakan mediator attritor mill (ELEKTRIM MOTORS MACHINERY PRE L50) dan bola zirconia diameter 0,2 mm pada lingkungan alkohol. Perbandingan massa untuk komposisi bahan, bola Zirconia diameter 02mm, dan alkohol masing-masing adalah 1:5:5/3. Pencampuran dilakukan dengan berbagai variasi waktu milling 2 jam, 4 jam dan 6 jam pada kecepatan attritor 600rpm. Untuk mendapatkan serbuk campuran $MgO+ZnO+TiO_3$, maka dilakukan penguapan alkohol dengan menggunakan *rotary evaporator* selama 1 jam.

Serbuk hasil pencampuran 2 jam, 4 jam dan 6 jam selanjutnya diuji PSA (*Particle Size Analyzer*) untuk mengetahui distribusi ukuran serbuk. Pengujian dilakukan dengan instrument PSA Malvern Master Size (Malvern

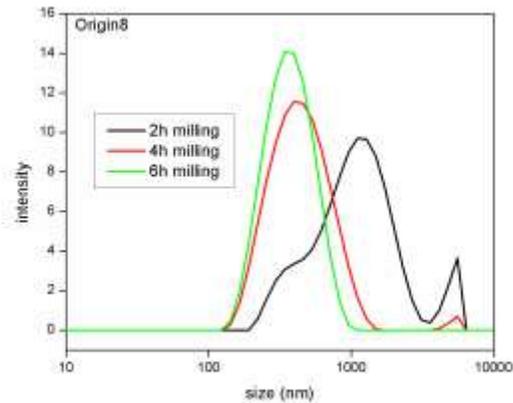
Instrument Ltd, Malvern). Serbuk dengan keseragaman maksimum kemudian dikalsinasi pada temperatur 750°C, 850°, dan 950°C pada serbuk hasil campuran. Pada proses sintering, sampel yang single phase dicampurkan dengan 4mol% Bi₂O₃ agar suhu sinternya dapat direduksi secara optimum menjadi 1100°C. Preparasi sampel dalam bentuk pellet disiapkan untuk proses sintering. Preparasi diperoleh dengan menekan serbuk hasil campuran (Mg/Zn)/TiO₃ ditambah dengan 4mol% Bi₂O₃ dengan cetakan berdiameter 13mm dan tebal mendekati 1mm dibawah tekanan 100MPa. Sintering dilakukan pada waktu tahan 4

Karakterisasi struktur dilakukan dengan menggunakan X-Ray Diffractometer(XRD) (Philips X'Pert MPD) dengan radiasi Cu α (1.54058). Identifikasi fasa dilakukan dengan menggunakan software Match2 dan kuantitas fasa diperoleh dari Refinement Rietveld. Karakteristik sifat listrik dilakukan dengan Impedance Analyzer (Solartron SI 1260) dengan tegangan 1 V dan range frekuensi 0,1 Hz sampai dengan 32 MHz pada temperature ruang.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Ukuran butir dari masing-masing serbuk bahan yang digunakan dalam proses sintesis Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO₃ biasanya tidak sama. Sehingga perlu dilakukan penggerusan agar ukuran butir serbuk sama. Penggerusan pada penelitian ini dilakukan dengan menggunakan alat *attritor mill* dalam lingkungan alkohol. Media penggerus dalam *attritor mill* adalah bola zirconia dengan diameter 0.2mm. Penggilingan dilakukan dengan menggunakan variasi waktu *milling*. Variasi waktu yang digunakan yaitu 2 jam, 4 jam dan 6 jam. Variasi waktu *milling* dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui keseragaman ukuran serbuk dengan menggunakan teknik *attritor milling*. Penggerusan dilakukan dengan menggunakan kecepatan *milling* yang konstan. Kecepatan yang digunakan dalam proses penggerusan dengan menggunakan *attritor mill* yaitu sebesar 600 rpm. Setelah melalui proses penggerusan yaitu menguapkan alkohol. Penguapan alkohol dilakukan dengan tujuan untuk menghasilkan serbuk hasil sintesis. Penguapan dilakukan dengan menggunakan *rotary evaporation*. Setelah diuapkan maka diperoleh serbuk campuran hasil sintesis.

Proses selanjutnya yaitu pengukuran distribusi partikel. Pengujian dilakukan pada serbuk hasil sintesis dengan variasi waktu *milling* yang berbeda. Pengujian distribusi partikel dilakukan dengan pengujian PSA. Pengujian ini dilakukan untuk mengetahui distribusi ukuran partikel terhadap pengaruh variasi waktu *milling*. Distribusi ukuran partikel dilakukan dengan menggunakan instrumen PSA *Malvern Master Size* (Malvern Instrument Ltd, Malvern). Pengujian PSA dilakukan karena dengan pengukuran ini memiliki beberapa kelebihan. Pertama, hasil yang didapat lebih akurat dalam pengukuran partikel. Keakuratan itu dikarenakan partikel dari sampel uji didispersikan kedalam sebuah media sehingga ukuran partikel yang terukur merupakan partikel tunggal. Kedua, hasil dari pengukuran berupa distribusi, sehingga dapat menggambarkan keseluruhan kondisi sampel.



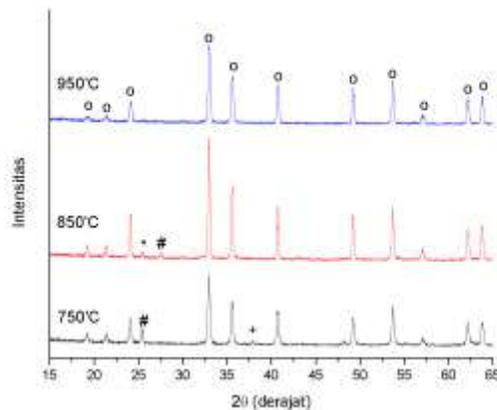
Gambar. 1. Distribusi Partikel Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO₃ dengan perbedaan waktu *milling*

Hasil pengujian PSA menunjukkan bahwa sampel dengan waktu *milling* 2 jam belum menunjukkan keseragaman ukuran yang baik. Karena pada sampel yang *dimilling* selama 2 jam masih menunjukkan adanya tiga populasi berdasarkan Gambar 1 Populasi pertama menunjukkan besarnya ukuran serbuk yaitu sebesar 396,058nm. Populasi kedua dari sampel yang *dimilling* 2 jam yaitu sebesar 1106,435nm. Sedangkan pada populasi ketiga sebesar 5559,644nm. Waktu *milling* ditambah dari 2 jam menjadi 4 jam. Hasil dari sampel yang *dimilling* selama 4 jam memiliki dua populasi berdasarkan Gambar 1. Sudah tampak lebih baik jika dibandingkan dengan sampel yang *dimilling* selama 2 jam. Populasi distribusi pertama mempunyai ukuran serbuk sebesar 473,5nm dengan intensitas 98,8%. Populasi distribusi yang kedua yaitu sebesar 5190 dengan intensitas 1,2%. Berdasarkan hasil yang didapat, dari waktu 2 jam ditambah sampai 4 jam terjadi penurunan intensitas dari populasi distribusi ukuran partikel. Selanjutnya, pengukuran dilakukan pada serbuk bahan dengan variasi waktu *milling* selama 6 jam. Serbuk bahan yang dicampur dengan waktu *milling* yang semakin lama yaitu dengan waktu 6 jam didapatkan hasil distribusi rata-rata ukuran partikel mencapai 351,6 nm dengan intensitas 100%. Artinya, partikel terdistribusi merata pada ukuran 351,6nm. Jika melihat Gambar 1 secara keseluruhan reduksi ukuran yang paling optimum dalam membentuk keseragaman distribusi partikel yakni dengan waktu 6 jam.

Perbedaan distribusi ukuran partikel dipengaruhi oleh banyaknya energi mekanik yang diberikan pada bola-bola dalam *milling* sehingga timbul percepatan. Percepatan dari bola akan menimbulkan gesekan antara bola-bola dan juga bola dengan serbuk yang ada didalam. Karena bola dan serbuk terperangkap dalam ruang yang sempit maka akan timbul gerak relatif diantara partikel-partikel yang ada dalam ruang itu. Sehingga, semakin lama proses *milling* maka reduksi partikel berlangsung semakin lama. Jadi, dengan waktu *milling* yang semakin lama, keseragaman distribusi ukuran partikel akan semakin optimum terbentuk.

Kalsinasi pada serbuk campuran dilakukan untuk menentukan fasa apa saja yang terbentuk setelah proses pencampuran. Analisa fasa dilakukan dengan menggunakan software Match2. Hasil yang paling optimum dari proses pencampuran yaitu dengan lama waktu *milling* 6 jam dikalsin

pada temperatur 750°C, 850°C dan 950°C untuk mendapatkan fasa tunggal menghasilkan fasa tunggal dari (Mg/Zn)TiO₃ hasil karakterisasi XRD ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar. 2. Pola difraksi hasil kalsinasi pada sampel campuran dengan milling 6 jam dan kalsinasi 750°C, 850°C, dan 950°C 4 jam. (keterangan: o=(Mg/Zn)TiO₃, *=TiO₂(rutile) # = Mg₂TiO₅).

Berdasarkan Gambar 2 Pola difraksi hasil kalsinasi serbuk campuran selanjutnya dianalisa dengan menggunakan software Match2. Analisis dengan menggunakan Match2 dilakukan untuk mengetahui fasa apa saja yang terbentuk dari proses kalsinasi. Gambar 2 terlihat pada kalsinasi dengan temperatur 750°C sudah terbentuk fasa (Mg/Zn)TiO₃ namun masih ada fasa yang lain yang tidak diinginkan yaitu MgO dan TiO₂. Selanjutnya temperatur kalsinasi ditingkatkan dengan 850°C. Pada temperatur kalsinasi 850°C sudah terbentuk fasa utama (Mg/Zn)TiO₃ namun terbentuk fasa sekunder dari Mg₂TiO₅. Ketika temperatur kalsinasi dinaikkan menjadi 950°C, didapatkan fasa tunggal dari (Mg/Zn)TiO₃. Berdasarkan analisa fasa hasil XRD diperoleh fasa tunggal (Mg/Zn)TiO₃ yaitu pada sampel dengan waktu milling selama 6 jam dan kalsinasi pada temperatur 950°C.

IV. KESIMPULAN

Pencampuran dengan *attritor* pada sintesis Mg_{0,8}Zn_{0,2}TiO₃ dapat menghasilkan serbuk dengan keseragaman tinggi membentuk ukuran serbuk submikronik. Keseragaman distribusi ukuran serbuk rata-rata sebesar 351,6 nm dengan lama waktu milling 6 jam dengan kecepatan 600 rpm 2. Fasa tunggal (Mg/Zn)TiO₃ diperoleh melalui proses milling selama 6 jam dan kalsinasi pada temperatur 950°C selama 4 jam.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis S.R. Rani mengucapkan terimakasih kepada Direktorat Pendidikan Tinggi yang telah memberikan dukungan finansial melalui pendanaan PKM tahun 2015.

DAFTAR PUSTAKA

[1] M. Saukani and S. Suasmoro, "Characterization of Mg_{0.8}Zn_{0.2}TiO₃ Prepared via Liquid Phase Sintering," in *Advanced Materials Research*, 2015, vol. 1112, pp. 11–14.

[2] M. Zhang, L. Li, W. Xia, and Q. Liao, "Structure and properties analysis for MgTiO₃ and (Mg_{0.97}Mn_{0.03})TiO₃ (M = Ni, Zn, Co and Mn) microwave dielectric materials," *J. Alloys Compd.*, vol. 537, pp. 76–79, Oct. 2012.

[3] H. J. Jo, J. S. Kim, and E. S. Kim, "Microwave dielectric properties of MgTiO₃-based ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 41, Supplement 1, pp. S530–S536, Jul. 2015.

[4] A. Ullah, Y. Iqbal, T. Mahmood, A. Mahmood, A. Naeem, and M. Hamayun, "Kinetic analysis on the synthesis of Mg_{0.95}Zn_{0.05}TiO₃ microwave dielectric ceramic by polymeric precursor method," *Ceram. Int.*, vol. 41, no. 10, Part B, pp. 15089–15096, Dec. 2015.

[5] H. T. Wu, Y. S. Jiang, Y. J. Cui, X. H. Zhang, X. Jia, and Y. L. Yue, "Improvements in the Sintering Behavior and Microwave Dielectric Properties of Geikielite-Type MgTiO₃ Ceramics," *J. Electron. Mater.*, vol. 42, no. 3, pp. 445–451, Dec. 2012.

[6] K. P. Surendran, A. Wu, P. M. Vilarinho, and V. M. Ferreira, "Sol-Gel Synthesis of Low-Loss MgTiO₃ Thin Films by a Non-Methoxyethanol Route," *Chem. Mater.*, vol. 20, no. 13, pp. 4260–4267, Jul. 2008.

[7] H. Cheng, B. Xu, and J. Ma, "Preparation of MgTiO₃ by an improved chemical co-precipitation method," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 16, no. 19, pp. 1570–1572, Oct. 1997.

[8] G. Parthasarathy and S. V. Manorama, "A novel method for synthesizing nano-crystalline MgTiO₃ geikielite," *Bull. Mater. Sci.*, vol. 30, no. 1, pp. 19–21, Feb. 2008.

[9] G. Pfaff, "Peroxide route for synthesis of magnesium titanate powders of various compositions," *Ceram. Int.*, vol. 20, no. 2, pp. 111–116, Jan. 1994.

[10] X. Zhou, Y. Yuan, L. Xiang, and Y. Huang, "Synthesis of MgTiO₃ by solid state reaction and characteristics with addition," *J. Mater. Sci.*, vol. 42, no. 16, pp. 6628–6632, May 2007.

[11] J. B. Huang, B. Yang, C. Y. Yu, G. F. Zhang, H. Xue, Z. X. Xiong, G. Viola, R. Donnan, H. X. Yan, and M. J. Reece, "Microwave and terahertz dielectric properties of MgTiO₃-CaTiO₃ ceramics," *Mater. Lett.*, vol. 138, pp. 225–227, Jan. 2015.

[12] F. U. Ermawati, S. Pratapa, S. Suasmoro, T. Hübner, and U. Banach, "Preparation and structural study of Mg_{1-x}Zn_xTiO₃ ceramics and their dielectric properties from 1 Hz to 7.7 GHz," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 27, no. 7, pp. 6637–6645, Mar. 2016.

[13] R. Angela and S. Pratapa, "Sintesis MgTiO₃ dengan Variasi Temperatur Kalsinasi Menggunakan Metode Pencampuran Larutan," *J. Sains Dan Seni ITS*, vol. 1, no. 1, pp. B73–B75, 2012.

[14] K. A. Gavhane, *Unit Operations-i Fluid Flow and Mechanical Operations*. Nirali Prakashan, 2009.

[15] R. A. Varin, T. Czujko, and Z. S. Wronski, *Nanomaterials for Solid State Hydrogen Storage*. Springer Science & Business Media, 2009.

[16] B. A. Wechsler and R. B. Von Dreele, "Structure refinements of Mg₂TiO₄, MgTiO₃ and MgTi₂O₅ by time-of-flight neutron powder diffraction," *Acta Crystallogr. B*, vol. 45, no. 6, pp. 542–549, Dec. 1989.