

Karakterisasi Listrik dari Material $Zn_{0,8}Mg_{0,2}TiO_3$ dengan Penambahan V_2O_5 Menggunakan Metode Reaksi Padat

Maya Andansari, Suasmoro

Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111

E-mail: suasm@physics.its.ac.id

Abstrak—Telah dilakukan sintesis material $Zn_{0,8}Mg_{0,2}TiO_3$ menggunakan metode reaksi padat dengan variasi 2 mol% dan 4 mol% V_2O_5 serta suhu sintering 1000°C dan 1100°C selama 4 jam dan 8 jam. Proses kalsinasi dilakukan pada temperatur 800°C untuk menghasilkan fasa tunggal berukuran nanometer. Sinter fasa cair dimaksudkan untuk menurunkan suhu sinter $Zn_{0,8}Mg_{0,2}TiO_3$ dengan aditif 2 mol% V_2O_5 dan 4 mol% V_2O_5 yang mengalami keadaan melting point saat proses sinter terjadi. Dilakukan identifikasi fasa untuk semua sampel yang menghasilkan terbentuknya fasa sekunder TiO_2 dan Zn_2TiO_4 . Penambahan zat aditif V_2O_5 dapat memicu pertumbuhan ukuran butir yang mengakibatkan konstanta dielektrik besar pada daerah polarisasi dipolar. Secara keseluruhan, sampel dengan nilai densitas terbesar memiliki nilai resistivitas dan konstanta dielektrik yang tinggi, sedangkan nilai konduktivitas rendah.

Kata Kunci— Dielektrik, polarisasi dipolar, sintering fasa cair.

I. PENDAHULUAN

Aplikasi material dielektrik pada daerah kerja gelombang mikro harus memenuhi spesifikasi yaitu konstanta dielektrik (ϵ_r) yang tinggi sehingga mampu dilakukan miniaturisasi komponen, nilai faktor kualitas (Q_f) yang tinggi agar mampu meningkatkan rasio frekuensi terhadap *noise*. Spesifikasi yang sudah diuraikan tersebut diperlukan untuk perangkat microwave. $ZnTiO_3$ dengan konstanta dielektrik yang tinggi dan koefisien suhu rendah dari frekuensi resonansi merupakan material yang sangat baik untuk resonator dielektrik dan filter dalam perangkat microwave [4]. $ZnTiO_3$ memiliki konstanta dielektrik $\epsilon_r \sim 19$, koefisien temperatur τ_f rendah, nilai faktor kualitas $Q_f \sim 3000$ pada frekuensi 10 GHz [2]. Permasalahan yang dihadapi dalam aplikasi $ZnTiO_3$ sebagai material dengan dielektrik gelombang mikro adalah suhu sinter mencapai 1300°C. Tingginya suhu sinter mengakibatkan ukuran butir materialnya dipastikan berorde mikromoter walaupun partikel bubuk kalsinasi awalnya berorde nanometer. Untuk mereduksi suhu sinter terdapat tiga cara yang dapat dilakukan yaitu: (1) menambahkan dopan yang memiliki titik leleh yang lebih rendah ke dalam *host* material (2) proses sintesis secara kimia yang dapat memperkecil ukuran partikel material (3) mencari material baru yang memiliki suhu sintering rendah (normalnya dibawah 1000°C). Pada penelitian terdahulu, penambahan material *glass* secara efektif menurunkan suhu sintering tetapi

mengurangi sifat dielektrik material tersebut. Material *glass* yang sering digunakan adalah V_2O_5 [3].

Sinter merupakan proses pemanasan pada suhu tinggi pada material keramik yang bertujuan untuk menurunkan energi bebas, menaikkan kohesi antar partikel-partikel penyusun material sehingga terjadi pepadatan melalui eliminasi porositas serta terjadi perubahan ukuran butir [1]. Berdasarkan kehadiran fasa cair selama proses berlangsung, *sintering* dibedakan menjadi *sintering* fasa padat (*solid phase sintering*) dan *sintering* fasa cair (*liquid phase sintering*). Sintering fasa cair adalah salah satu metode yang dilakukan untuk menurunkan suhu sinter yaitu dengan cara menambahkan material dengan titik leleh rendah atau dengan kata lain pada saat proses sinter berlangsung zat aditif telah berada dalam keadaan fasa cair [6].

Elektron-elektron dalam material yang tergolong dalam bahan dielektrik cenderung terikat sangat kuat sehingga meskipun diberikan medan listrik, elektron bebas tidak akan terbentuk hingga pada batas tertentu, kemampuan inilah yang disebut sebagai permitivitas bahan dielektrik. Jika medan listrik luar yang diberikan pada material ini maka terjadi pergeseran muatan negative melawan arah medan listrik yang diberikan dan sebaliknya untuk muatan positif sehingga membentuk dipol yang dikenal sebagai peristiwa polarisasi. Polarisasi yang terjadi pada bahan dielektrik bergantung pada frekuensi yang diterapkan padanya. Beberapa kemungkinan polarisasi yang terjadi yaitu polarisasi atomik, polarisasi ionik, polarisasi dipolar, dan polarisasi muatan ruang [5].

Melalui penelitian ini akan dilakukan sintesis material $Zn_{1-x}Mg_xTiO_3$ ($x=2$) murni maupun dengan penambahan 2 mol% dan 4 mol% V_2O_5 menggunakan metode reaksi padat. Selain itu, dari sintesis yang dilakukan dapat diketahui densifikasi, struktur mikro dan sifat dielektrik sampel.

II. METODE

Langkah awal dalam penelitian ini, menyiapkan peralatan dan bahan yang diperlukan untuk mensintesis dan karakterisasi $ZnTiO_3$. Peralatan yang digunakan antara lain seperangkat Timbangan digital *O'haus PA214*, Furnace *Carbolite*, Difraktometer Sinar X *Philips*, SEM-EDX *EVO® MA10*, Impedance Analyzer *Solatron SI 1260*, Planetary Ball Mill *Pulverisette 5*, Perangkat Lunak *Reitica* dan *Match2*.

Sedangkan bahan yang digunakan adalah berupa serbuk Titanium Dioxide (TiO_2) (Merck, >99%), serbuk Magnesium Oxide (MgO) (Merck, >97%), serbuk Zinc Oxide (ZnO) (Merck, >99%), serbuk Vanadium Oxide (V_2O_5) (Aldrich, 99%), Silver Conductive Paste (Ag) (Aldrich, 735825) dan alkohol 96%. Langkah selanjutnya, Serbuk hasil pemanasan disintesis menggunakan metode *solid state reaction*. Untuk mendapatkan fasa tunggal $\text{Zn}_{0,8}\text{Mg}_{0,2}\text{TiO}_3$ prekursor ditimbang dengan perbandingan (ZnO , MgO) : $\text{TiO}_2 = 1,004 : 1$. Proses sintesis menggunakan metode *solid state reaction*. Selanjutnya, dilakukan penggilingan dengan *Planetary Ball Mill* selama 4 jam dengan kecepatan 250 rpm. Larutan dari ketiga campuran bahan hasil penggilingan di evaporasi. Larutan yang telah kering digerus menggunakan mortar dan dikalsinasi mulai dari suhu 300°C , 400°C , 650°C , 800°C , 950°C selama 2 jam. Kemudian semua serbuk hasil kalsinasi dilakukan uji XRD untuk mendapatkan fasa tunggal ZnTiO_3 . Diketahui bahwa ZnTiO_3 memiliki suhu sintering mencapai 1300°C . Untuk mereduksi suhu sintering dari bahan tersebut, maka dilakukan penambahan dopan yang memiliki titik leleh yang lebih rendah ke dalam *host* material. Dalam hal ini bahan yang dipilih adalah Vanadium Oxide (V_2O_5). Pada sintesis ini dilakukan penambahan 2 mol% dan 4 mol% V_2O_5 . Setelah itu, dilakukan proses penggilingan dengan *Planetary Ball Mill* selama 1 jam dengan kecepatan 125 rpm. Selanjutnya serbuk hasil sintesis dipadatkan membentuk *disk* kemudian disinter pada suhu 1000°C dan 1100°C dengan waktu tahan 4 jam dan 8 jam. Semua Sampel yang telah disinter dilakukan uji difraksi sinar X, pengukuran *bulk density* (ρ_b) dengan metode Archimedes, pengamatan Struktur Mikro dengan *Scanning Electron Microscopy* (SEM), dan karakterisasi Sifat Dielektrik.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

a. Hasil Sintesis Fasa Tunggal $\text{Zn}_{0,8}\text{Mg}_{0,2}\text{TiO}_3$

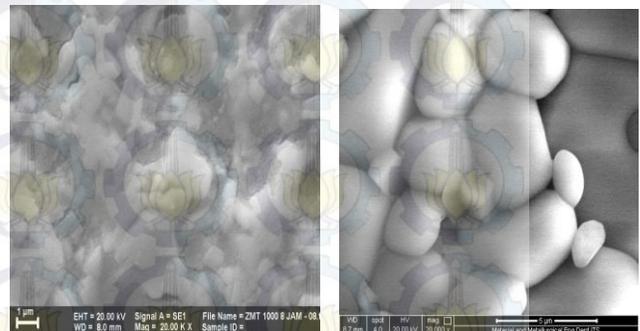
Sampel $\text{Zn}_{0,8}\text{Mg}_{0,2}\text{TiO}_3$ disintesis dengan metode reaksi padat, dilakukan pengujian sinar X. Identifikasi fasa pola difraksi sinar X dilakukan dengan perangkat lunak *Match2* dengan database PDF-2. Dari hasil pola difraksi sinar X yang dilakukan diketahui bahwa fasa tunggal ZnTiO_3 terbentuk pada temperatur 800°C dengan parameter kisi yang terukur adalah $a = b = 5,0775(2) \text{ \AA}$ dan $c = 13,9350(5) \text{ \AA}$. Hasil ini menunjukkan terjadi perbedaan dengan yang dilaporkan oleh Ming-Liang Hsieh, *et al.* (2007) bahwa parameter kisi dari ZnTiO_3 adalah $a = b = 5,0787 \text{ \AA}$ dan $c = 13,9271 \text{ \AA}$. Perbedaan tersebut menunjukkan bahwa terbentuknya $\text{Zn}_{0,8}\text{Mg}_{0,2}\text{TiO}_3$ dengan sumbu a dan b berkurang panjang $0,0012 \text{ \AA}$ akibat substitusi 20% posisi Zn^{2+} berjejari atom $0,074 \text{ \AA}$ digantikan Mg^{2+} berjejari atom $0,072 \text{ \AA}$. Untuk ZnO-MgO-TiO_2 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 .

b. Densifikasi

Seluruh sampel yang telah disinter pada suhu 1000°C dan 1100°C selama 4 jam serta 8 jam dilakukan pengukuran densitas *bulk* menggunakan metode Archimedes. Hasil pengukuran densitas pada temperatur sintering 1000°C selama 4 jam dan 8 jam menyatakan bahwa semakin lama waktu tahan sintering akan mengurangi porositas dikarenakan pertumbuhan butir yang terjadi. Hal ini dapat mengakibatkan material yang mempunyai waktu tahan sintering lama akan memiliki densitas yang lebih tinggi dibandingkan dengan material yang memiliki waktu tahan sintering rendah. Material dengan penambahan fasa cair mampu lebih efektif meningkatkan densifikasi jika dibandingkan dengan tanpa aditif. Pada proses sinter fasa cair dikenal tahapan pelarutan dan pengendapan, pada tahapan ini butir-butir berukuran kecil larut ke dalam fasa cair, bermigrasi melalui fasa cair dan kemudian mengendap di permukaan butir berukuran besar (Rahaman, 2003). Sehingga dalam proses sintering fasa cair meskipun porositas dapat direduksi lebih cepat namun ukuran butir akan tumbuh lebih cepat jika dibandingkan dengan sampel tanpa penambahan zat aditif. Selain itu, dapat diketahui juga bahwa terjadi penurunan densitas pada sampel ZnTiO_3 dengan waktu tahan 4 jam dan 8 jam serta $\text{ZnTiO}_3 + 2 \text{ mol\% } \text{V}_2\text{O}_5$ 8 jam untuk temperatur 1000°C ke 1100°C . Penurunan densitas ini dikarenakan heksagonal ZnTiO_3 terurai menjadi kubik Zn_2TiO_4 dan *Rutile* TiO_2 .

c. Karakteristik Struktur Mikro

Struktur mikro dari sampel diamati dengan SEM, ditunjukkan Gambar 1. Hasil ini merupakan citra dari sampel ZnTiO_3 murni dan dengan penambahan zat aditif sinter 1000°C selama 8 jam. Hasil perhitungan ukuran butir menggunakan *cross section measurement* (Lord, 2013) didapatkan bahwa ukuran butir dari ZnTiO_3 tanpa penambahan zat aditif sinter 1000°C selama 8 jam adalah $0,93 \mu\text{m}$ (Gambar 1 (a)). Sedangkan ukuran butir dari ZnTiO_3 dengan penambahan zat aditif 2 mol% V_2O_5 sinter 1000°C selama 8 jam adalah $2,624 \mu\text{m}$ (Gambar 1 (b)). Hasil ini Data ukuran butir ini menunjukkan bahwa zat aditif berperan sebagai bahan yang mampu memicu *grain growth* lebih cepat.



Gambar 1 Struktur mikro melalui Foto SEM sampel ZnTiO_3 sinter 1000°C selama 8 jam. (a)tanpa zat aditif (b)penambahan 2 mol % V_2O_5

d. Karakterisasi Sifat Listrik

Pengukuran sifat dielektrik sampel dalam penelitian ini dilakukan pada temperatur kamar dengan frekuensi berubah-ubah antara 1 Hz hingga 32 MHz. Material ZnTiO_3 merupakan material dengan struktur *ilmenite*, yang merupakan turunan dari struktur alumina Al_2O_3 . Atom Al diganti oleh Zn dan Ti, dimana atom Zn bermuatan $2+$ dan Ti bermuatan $4+$, sehingga didalam material ini timbul dipol atomik. Ketika sampel diberikan medan listrik, timbulah polarisasi dipolar. Polarisasi dipolar ini tidak diakibatkan oleh adanya ruang kosong (cavity) didalam material melainkan adanya atom Zn dan Ti. Ketika frekuensi medan listrik dikurangi, polarisasi dipolar akan berubah menjadi polarisasi space charge. Namun, polarisasi space charge terjadi pada muatan listrik yang tidak terikat yaitu pada batas butir (grain boundary) dan ruang kosong (cavity). Selain itu, dapat diketahui bahwa material dengan densitas yang tinggi, mengalami perubahan ke polarisasi space charge yang lebih lambat dibandingkan dengan densitas yang rendah. Pada densitas yang rendah, material memiliki porositas yang tinggi. Akibatnya, material lebih mudah mengalami polarisasi space charge dibandingkan polarisasi dipolar. Dari hasil penelitian yang telah dilakukan sampel ZnTiO_3 murni maupun dengan penambahan aditif V_2O_5 menghasilkan nilai konstanta dielektrik lebih tinggi. Hal ini, dikarenakan pembentukan fasa sekunder TiO_2 oleh dekomposisi fasa ZnTiO_3 . Dimana konstanta dielektrik dari TiO_2 ($\epsilon_r = 104$) jauh lebih tinggi daripada ZnTiO_3 ($\epsilon_r = 19$). Namun, pada beberapa sampel ZnTiO_3 murni maupun dengan penambahan aditif V_2O_5 sinter 1000°C dan 1100°C mengalami penurunan nilai konstanta dielektrik. Kemungkinan hal ini dikarenakan adanya fasa yang tidak diketahui pada hasil uji XRD. Besaran konstanta dielektrik material dipengaruhi oleh adanya fasa sekunder TiO_2 , Zn_2TiO_4 maupun fasa yang tidak diketahui pada hasil uji XRD. Hal ini dikarenakan polarisasi dipolar antara Zn dan Ti bisa digantikan oleh adanya polarisasi dipolar antara Zn dan V. Diketahui Ti memiliki muatan $4+$ dan V $5+$. Sedangkan pada sampel sampel ZnTiO_3 tanpa doping 1100°C , berada pada daerah space charge yang lebih rendah dibandingkan sampel ZnTiO_3 dengan penambahan V_2O_5 . Hal ini dikarenakan, pada material ZnTiO_3 dengan penambahan zat aditif V_2O_5 mempunyai pembawa muatan (elektron) yang lebih banyak akibat adanya defek ekstrinsik dari material. Pada pengukuran uji listrik yang sudah dilakukan, diketahui bahwa ketika frekuensi medan listrik rendah atau berkurang maka polarisasi dipolar akan berubah menjadi polarisasi space charge. Konduktivitas listrik ZnTiO_3 murni maupun dengan penambahan aditif V_2O_5 menunjukkan bahwa material dengan densitas yang tinggi memiliki konduktivitas yang rendah. Hasil ini, berbanding terbalik dengan nilai resistivitasnya yang besar. Material dengan densitas yang besar, memiliki porositas yang rendah. Tetapi kerapatan grain didalam material tersebut lebih tinggi dibandingkan dengan material dengan densitas rendah. Ketika kedua material diberi medan listrik, elektron yang bergerak pada material lebih rapat, karena material lebih rapat sehingga gerakan elektronnya menjadi lebih lambat.

Faktor disipasi dielektrik ($\tan \delta$) dapat diketahui dengan meninjau besaran Tan Delta berdasarkan frekuensi yang

diberikan. Secara keseluruhan ditunjukkan bahwa $\tan \delta$ semakin menurun seiring meningkatnya nilai frekuensi yang diberikan. Hal ini menunjukkan bahwa pada keadaan frekuensi yang tinggi perubahan posisi dipol sangat sedikit, sehingga gesekan antar molekul menjadi lebih sedikit. Penn et al (1997) menyatakan bahwa $\tan \delta$ material semakin besar jumlah porositas pada suatu sampel, maka $\tan \delta$ akan semakin meningkat dan sebaliknya. Pernyataan ini dapat dikonfirmasi dengan meninjau hasil penelitian dari besaran densitas Archimedes, secara keseluruhan material dengan densitas tertinggi mempunyai nilai $\tan \delta$ yang rendah dan relative stabil, dibandingkan dengan material dengan densitas rendah. Selain itu penyebab turunnya nilai $\tan \delta$ dapat pula diakibatkan oleh meningkatnya hambatan batas butir.

IV. KESIMPULAN

Pada penelitian ini berhasil didapatkan fasa tunggal ZnTiO_3 pada temperatur kalsinasi 800°C selama 2 jam. Penambahan temperatur sintering dari 1000°C ke 1100°C mengakibatkan penurunan densitas, hal ini dikarenakan heksagonal ZnTiO_3 terurai menjadi kubik Zn_2TiO_4 dan *Rutile* TiO_2 . Selain itu, penambahan aditif V_2O_5 dapat mempercepat pertumbuhan ukuran butir yang mengakibatkan nilai konstanta dielektrik besar pada daerah polarisasi dipolar. Secara keseluruhan, sampel dengan nilai densitas terbesar memiliki nilai resistivitas dan konstanta dielektrik yang tinggi, sedangkan nilai konduktivitas rendah.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Tuhan Yang Maha Esa, Kedua Orang Tua dan Keluarga, Dosen Wali, Dosen Pembimbing, Seluruh Elemen Pengajar dan Staf Jurusan Fisika, serta Teman-teman Penulis yang telah memberikan kelancaran, dukungan, dan motivasi kepada Penulis dalam melakukan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Ermawati F.U., Istihanah, R. Lestari, Suasmoro, dan S. Pratapa, (2012) "Structural and Microstructural Studies on $\text{Zn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{TiO}_3$ ($x=0.0-0.5$) Solid Solutions Formation," in *International Conference on Mathematics dan Series*.
- [2] Hsieh, M.-L., Chen, L.-S., Hsu, H.-C., Wang, S., Hough, M.-P. & Fu, S.-L. (2008) "Effect of oxide additives on the low-temperature sintering of dielectrics (Zn,MgTiO_3)". *Materials Research Bulletin*, 43, 3122-3129.
- [3] Huang C.-L., J. L. Hou, C.-L. Pan, C.-Y. Huang, C.-W. Peng, C.-H. Wei, dan Y.-H. Huang, (2008) "Effect of ZnO additive on sintering behavior dan microwave dielectric properties of $0.95\text{MgTiO}_3-0.05\text{CaTiO}_3$ ceramics," *Journal of Alloys dan Compounds*, vol. 450, no. 1-2, hal. 359-363.
- [4] Kim Tae Hyo & Kim Ho Yoon, (1998) "Microwave dielectric properties of Magnesium modified Zinc Titanat". *Journal of the Korean Physical Society*, vol 32 hal. 346-348.
- [5] Moulson, A.J., Herbert, J.M., 2003. "Electroceramics Second Edition". Great Britain: T.J. International, Padstow, Cornwall.
- [6] Rahaman M. N., (2003), *Ceramic Processing and Sintering*, 2nd edition, Marcel Dekker., New York.