

## Pengaruh Penambahan 0,5 Mol Berat Mn Terhadap Fasa dan Struktur Kristal Barium Titanat ( $\text{BaTiO}_3$ )

Zulkarnain Nst<sup>1)</sup>, A. Purwanto<sup>1, 2)</sup>, Josef. S<sup>2)</sup>, Yatno<sup>2)</sup>

1) Program Studi Materials Science, Program Pascasarjana Universitas Indonesia

2) Pusat Penelitian dan Pengembangan Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Bahan, Badan Tenaga Nuklir Nasional, Serpong.

**Zulkarnain Nst, A. Purwanto, Josef. S, Yatno.** Pengaruh Penambahan 0,5 Mol Berat Mn Terhadap Fasa dan Struktur Kristal Barium Titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) Jurnal Ilmu dan Rekayasa Material. Desember 1999; 1(3): 46-57.

### Abstrak

Telah dilakukan analisa mengenai pengaruh penambahan 0,5 mol berat Mn terhadap fasa dan struktur kristal barium titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ). Cuplikan diperoleh dengan metoda metalurgi serbuk dengan bahan dasar  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{MnO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$  yang merupakan grade reagen dari E-Merck, dengan perbandingan masing-masing 1 : 0,5 : 0,5. Difraktogram sinar-X dengan  $\lambda$  ( $\text{Co K}\alpha$ ) = 1,7889 Å dan scan secara kontinu pada temperatur kamar dianalisis menggunakan program kristalografi GSAS. Analisis struktur memperlihatkan bahwa bahan terdiri dari 5 (lima) fasa,  $\text{BaMn}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$  sebagai fasa utama dengan grup ruang P4mm, parameter kisi a dan c masing-masing 3,999 Å dan 4,025 Å, faktor pencocokan (reduced  $\chi^2$ ) = 2,175 dan 45 variabel. Sedangkan 4 (empat) fasa pengotor tersebut masing-masing memiliki fraksi berat yaitu  $\text{BaCO}_3$  (45,83%),  $\text{MnO}_2$  (8,47%),  $\text{TiO}_2$  (20,36%) dan  $\text{Mn}_2\text{Ti}_2$  (6,75%) masing-masing dengan grup ruang Pnma, P42/mnm, P41/amd dan P63/mmc.

Kata kunci : barium titanat, pola difraksi sinar-x, parameter struktur, GSAS.

### Abstract

The effect of 0.5 weight mol Mn on phase and crystal structure of barium titanate has been analyzed. The best sampel in this study were synthesized using powder metallurgy with stoichiometric amounts of  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{MnO}_2$  and  $\text{TiO}_2$  that were reagents from E-Merck. The X-ray diffractograms which were obtained with continuous counts and  $\lambda$  ( $\text{Co K}\alpha$ ) = 1,7889 Å at room temperatur, were refined using the crystallographic software package GSAS. Structural analysis shows that sample consists of 5 (five) phase where the crystal is  $\text{BaMn}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$  with the perovskite-type  $\text{BaTiO}_3$  structure, the space group tetragonal P4mm,  $a = 3,999$  Å,  $c = 4,025$  Å, the goodness of fit  $\chi^2$  is of 2,175 with 45 variables and the  $R_p$  and  $R_{wp}$  are of 18,8% and 24,2% respectively. The four phase weight fraction is  $\text{BaCO}_3$  (45,83%),  $\text{MnO}_2$  (8,47%),  $\text{TiO}_2$  (20,36%) and  $\text{Mn}_2\text{Ti}_2$  (6,75%) and space group each are Pnma, P42/mnm, P41/amd and P63/mmc.

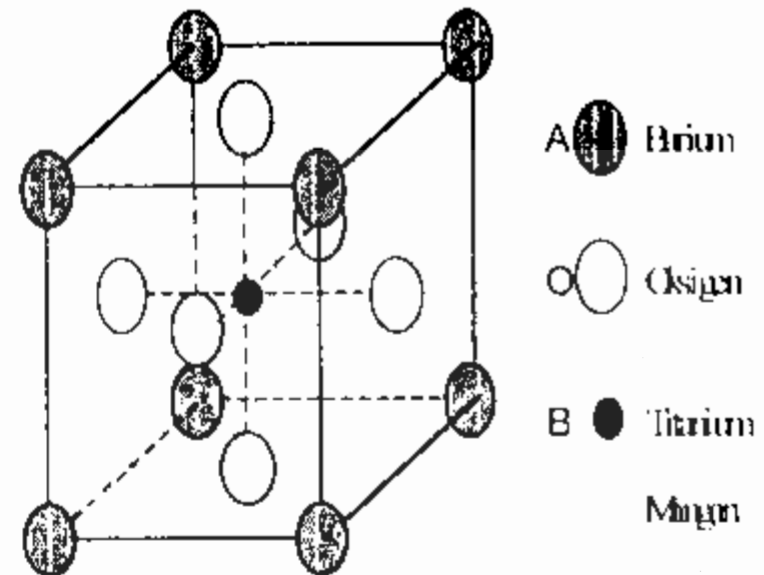
Keywords : X-ray diffraction, structure parameters, GSAS.

## Pendahuluan

Barium titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) merupakan material ferroelektrik yang sampai saat ini masih terus diteliti, karena memiliki struktur yang jauh lebih sempurna dibanding dengan bahan ferroelektrik lainnya. Dari sudut pandang aplikasi bahan ini sangat menarik, pertama karena secara kimia dan fisis sangat stabil, kedua memperlihatkan sifat ferroelektrik pada temperatur kamar dan di atasnya, serta yang terakhir dapat dengan mudah disiapkan dan dimanfaatkan dalam bentuk sampel keramik polikristal<sup>1,2</sup>.

Aplikasi dari barium titanat ini telah banyak dimanfaatkan antara lain untuk optical storage, signal processing dan akhir-akhir ini pemanfaatannya digunakan sebagai bahan compact disc (CD) dimana salah satu komponen dari bahan CD ini adalah bahan dielektrik.

Selain itu  $\text{BaTi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$  juga memiliki sifat yang tidak kalah menarik bila dibanding dengan barium titanat<sup>3</sup>, dimana pada struktur kristal  $\text{BaTi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$  ini akan terjadi substitusi antara atom Ti dan Mn (lihat gambar 1). Hal ini dapat terjadi karena kedua jenis atom ini memiliki besar jari-jari atom yang hampir sama<sup>4</sup>. Pengaruh perpaduan dua unsur logam transisi ini terlihat pada penelitian sifat-sifat dielektrik bahan ini dan salah satunya adalah pada nilai pengukuran konstanta dielektrik yang akan dilakukan kemudian. Sedang dalam penelitian ini akan dilihat pengaruh penambahan Mn terhadap fasa dan struktur kristal, dimana akan dapat dilihat fasa pengotor lainnya yang menyertai pembentukan  $\text{BaTi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$ . Disini juga akan dibandingkan pola difraksi dan nilai parameter struktur kristal dari  $\text{BaTi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$  dengan  $\text{BaTiO}_3$  standard, sehingga dari sini dapat dilihat sifat apa saja yang dapat mempengaruhi penambahan Mn terhadap barium titanat.



Gambar 1. Satu sel satuan struktur kristal  $\text{BaTiO}_3$  bentuk perovskite.

## Prosedur Percobaan

Pada percobaan ini digunakan senyawa sebagai bahan utama, yaitu :  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  dan  $\text{MnO}_2$ , sedangkan sebagai pelengkap digunakan poli vinil alkohol (PVA) yang berfungsi sebagai perekat dalam proses kompaksi (pemeletan), aseton dan kertas pembersih.

Dalam melakukan sintesa terhadap bahan digunakan 2 (dua) metoda. *Pertama* adalah membuat senyawa utama ( $\text{BaTi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$ ) dimana mula-mula dihitung perbandingan berat dari masing-masing bahan dasar ( $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  dan  $\text{MnO}_2$ ) dari E-Merck dengan kemurnian 99% serta perbandingan masing-masing = 1,0 : 0,5 : 0,5. Bahan ini kemudian digerus didalam hingga homogen (+ 3 jam), kemudian dilakukan variasi pada perlakuan kalsinasi, pemeletan atau sintering pada berbagai waktu dan temperatur. *Kedua* adalah melakukan analisa pola difraksi<sup>5</sup> dengan menggunakan perangkat GSAS<sup>6</sup>, untuk mengetahui pola difraksi sinar-x dan parameter struktur<sup>7</sup> dari berbagai macam variasi perlakuan (tabel 1).

Tabel. 1 Sintesis bubuk  $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$  dari bahan  $BaCO_3$ ,  $TiO_2$  dan  $MnO_2$ 

No	Kalsinasi		Pemeletan		Sintering		XRD
	°C	Jam	Ton	%PVA	°C	Jam	
1.	900	3	--	--	--	--	Ya
2.	900	4,5	--	--	--	--	Ya
3.	900	9	--	--	--	--	Ya
1.	300	1	5	--	800	5	Ya
2.	300	1	6	--	950	5	Ya
1.	300	1	5	3	800	5	Ya
2.	300	1	6	3	950	5	Ya

### Hasil dan Pembahasan

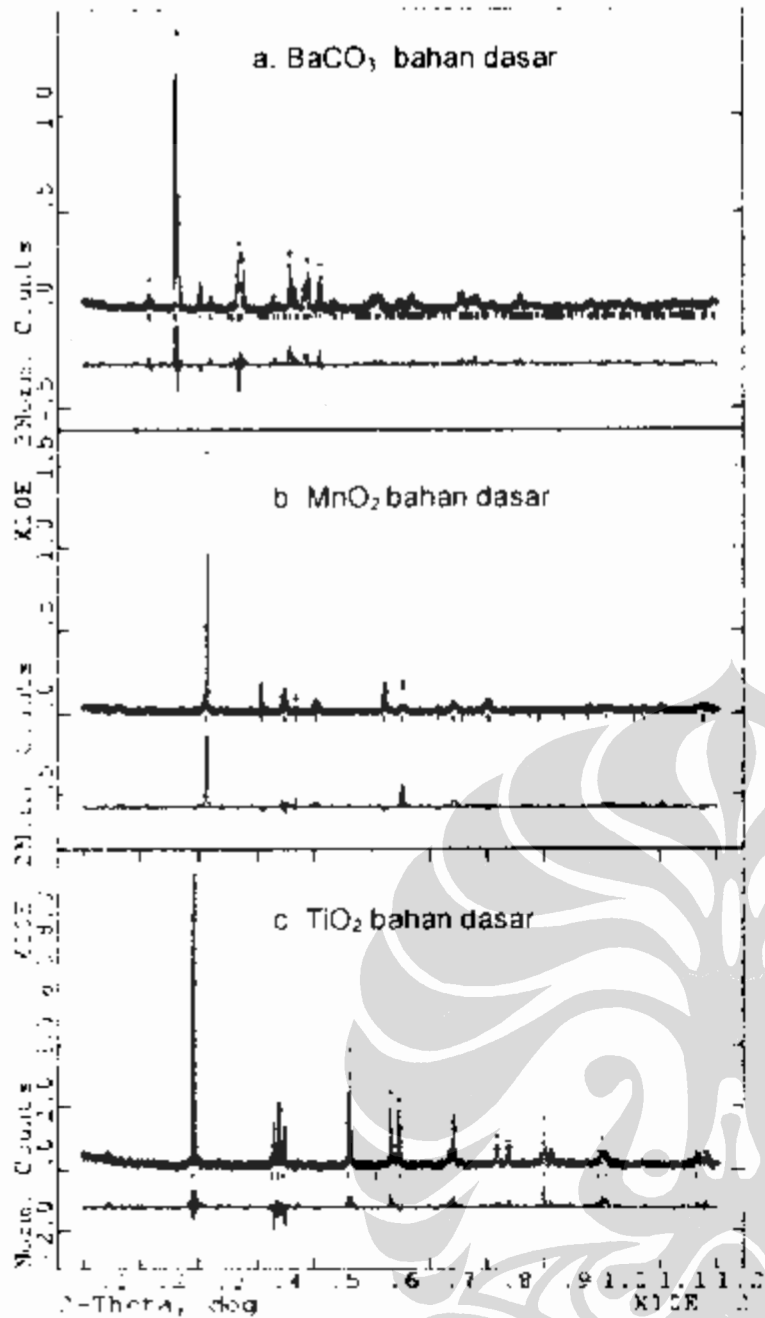
Untuk menentukan sampel mana yang terbaik, maka perlu dilakukan analisa hasil difraksi dengan menggunakan perangkat GSAS. Dengan perangkat tersebut data percobaan dan data literatur diolah. Setelah dihitung maka didapatkan pola difraksi sinar-x dimana disini ditampilkan pola difraksi data percobaan (dengan tanda plus) dan pola grafik hasil perhitungan (dengan tanda garis). Sedangkan berapa variabel yang dihaluskan (refinement) dapat ditampilkan dalam bentuk tabel yaitu berupa nilai parameter struktur dari bahan tersebut antara lain : grup ruang, parameter kisi, posisi atom, jumlah fasa yang ada selain fasa utama (maksimal jumlah fasa yang dapat dideteksi oleh GSAS adalah 9 fasa), error bar atau faktor pencocokan (reduced  $\chi^2$ ) dan lain-lain. Berikut ini adalah beberapa pola difraksi dan nilai parameter struktur yang diperoleh dari beberapa macam perlakuan terhadap bahan  $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$ .

Gambar 2 adalah tampilan pola difraksi dari bahan dasar, dimana pada gambar ini pengolahan data yang paling baik adalah pada bahan dasar  $TiO_2$ . Ini terlihat dari perbedaan pola kurva antara hasil pengamatan dan hasil perhitungan

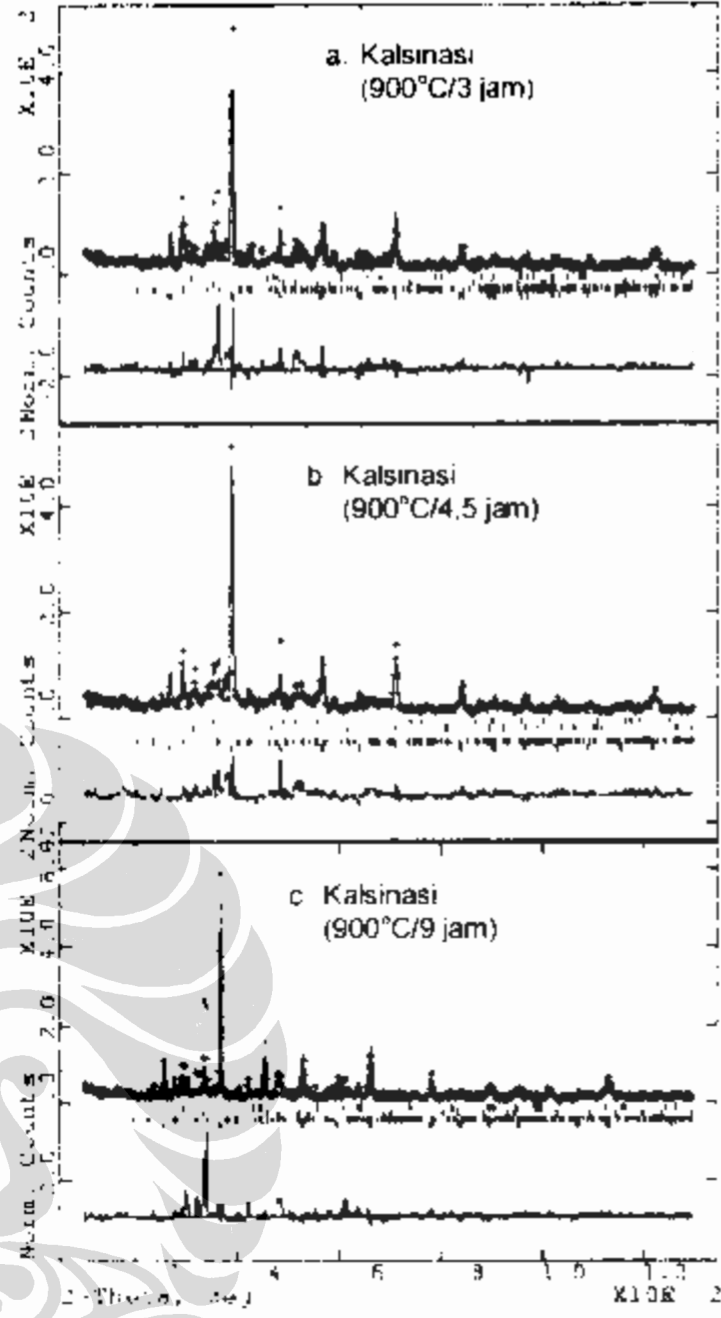
(ditunjukkan oleh kurva yang telah mengikuti pola garis lurus)

Pada tabel.2 ditampilkan nilai parameter struktur kristal dari bahan dasar yang diperoleh dengan cara menghaluskan (refinement) nilai parameter struktur yang dimiliki masing-masing bahan. Secara umum dapat dikatakan bahwa semakin kecil faktor pencocokan maka akan semakin baik kualitas bahan.

Pada gambar 3, pola grafik yang ditunjukkan adalah tiga variasi waktu kalsinasi yang berbeda yaitu : 3 ; 4,5 dan 9 jam dengan temperatur yang sama yaitu 900°C. Dari gambar tersebut dapat dilihat bahwa kualitas gambar 3(c) lebih baik bila dibandingkan gambar 3 (a) dan (b), hal ini terbukti dari puncak-puncak data pengamatan dengan plus (+) yang ada setelah proses penghalusan jauh lebih sedikit bila dibandingkan dengan 2 (dua) gambar yang lain. Ini juga berarti bahwa pola difraksi dari hasil perhitungan dengan tanda garis (-) sudah mengikuti pola difraksi dari data pengamatan dengan tanda. Untuk memperkuat kesimpulan pemilihan kualitas gambar 3(a) ini, dapat juga dilihat nilai parameter struktur dari hasil perhitungan penghalusan pada tabel 3.



Gambar 2. Pola difraksi bahan dasar BaCO<sub>3</sub>, MnO<sub>2</sub> dan TiO<sub>2</sub> pada suhu ruang (Lihat tabel 2 untuk parameter struktur kristalnya).



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X BaTi<sub>4</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>13</sub> yang hanya mendapat perlakuan kalsinasi. (Lihat tabel 3 untuk parameter struktur kristalnya)

Tabel 2. Parameter struktur kristal bahan dasar (BaCO<sub>3</sub>, MnO<sub>2</sub> dan TiO<sub>2</sub>) (Lihat gambar 2 untuk difraktogramnya)

Fasa	Nama Atom	Posisi -X	Posisi -Y	Posisi -Z	Parameter Kisi
a. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba	0,24 (1)	0,25 (fix)	0,41 (1)	a = 6,414 (2) b = 5,287 (2) c = 8,921 (3)
	C	0,97 (3)	0,25 (fix)	0,82 (2)	
	O	0,51 (2)	0,25 (fix)	0,89 (1)	
	O	0,09 (2)	0,25 (fix)	0,73 (1)	
	O	0,24 (7)	0,25 (fix)	0,41 (4)	
Rp	=	0,221			
WRp	=	0,285			
Red. $\chi^2$	=	2,813			
Variabel	=	26			

b. MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm  Rp = 0,359 WRp = 0,460 Red. $\chi^2$ = 3,946 Variabel = 17	Mn	0,00 (0)	0,00 (0)	0,00 (0)	a = 4,400 (0) c = 2,870 (0)
	O	0,37 (0)	0,37 (0)	0,00 (0)	
c. TiO <sub>2</sub> Tetragonal I 41/amd  Rp = 0,215 WRp = 0,288 Red. $\chi^2$ = 2,297 Variabel = 17	Ti	0,50 (0)	0,25 (0)	0,52 (1)	a = 3,780 (0) c = 9,500 (0)
	O	0,00 (0)	-0,21 (1)	0,23 (1)	

Tabel 3a. Parameter struktur untuk BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang hanya mengalami perlakuan kalsinasi dengan suhu 900°C/3 jam. (Lihat gambar 3a untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dim Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dim Semua Fasa (%)
1. BaTi <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> O <sub>3</sub> Tetragonal P4mm	Ba	0,46 (8)	1,00 (fix)	a = 3,996 (2) c = 4,029 (5)	62,68
	Ti	-0,09 (10)	0,77 (95)		
	O	0,81 (0)	1,00 (fix)		
	O	-0,02 (0)	1,00 (fix)		
	Mn	-0,08 (10)	0,23 (95)		
2. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba	0,41 (2)	1,00 (fix)	a = 6,407 (11) b = 5,287 (8) c = 8,921 (16)	19,97
	C	0,80 (10)	1,00 (fix)		
	O	0,92 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,73 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,41 (0)	1,00 (fix)		
3. MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (0)	1,00 (fix)	a = 4,380 (10) c = 2,695 (15)	15,15
	O	0,00 (0)	1,00 (fix)		
4. TiO <sub>2</sub> Tetragonal I 41/amd	Ti	0,53 (7)	1,00 (fix)	a = 3,771 (22) c = 9,480 (99)	2,20
	O	0,23 (0)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$ = 3,080		Rp = 0,245			
Variabel = 40		WRp = 0,313			

Tabel 3b. Parameter struktur untuk BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang hanya mengalami perlakuan kalsinasi dengan suhu 900°C/4,5 jam. (Lihat gambar 3b untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dim Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dim Semua Fasa (%)
1. BaTi <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> O <sub>3</sub> Tetragonal P4mm	Ba	0,47 (0)	1,00 (fix)	a = 3,998 (2) c = 4,020 (5)	60,41
	Ti	-0,08 (0)	0,43 (77)		
	O	0,81 (0)	1,00 (fix)		
	O	-0,02 (0)	1,00 (fix)		
	Mn	-0,08 (0)	0,57 (77)		

2. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba	0,40 (1)	1,00 (fix)	a = 6,438 (25) b = 5,264 (15) c = 8,982 (25)	12,84
	C	0,72 (15)	1,00 (fix)		
	O	0,92 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,74 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,41 (0)	1,00 (fix)		
3 TiO <sub>2</sub> Tetragonal I 41/amd	Ti	0,52 (0)	1,00 (fix)	a = 3,701 (19) c = 9,427 (92)	9,86
	O	0,22 (0)	1,00 (fix)		
4. MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (0)	1,00 (fix)	a = 4,317 (7) c = 2,686 (4)	16,89
	O	0,00 (0)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$ = 2,587		Rp = 0,215			
Variabel = 32		WRp = 0,285			

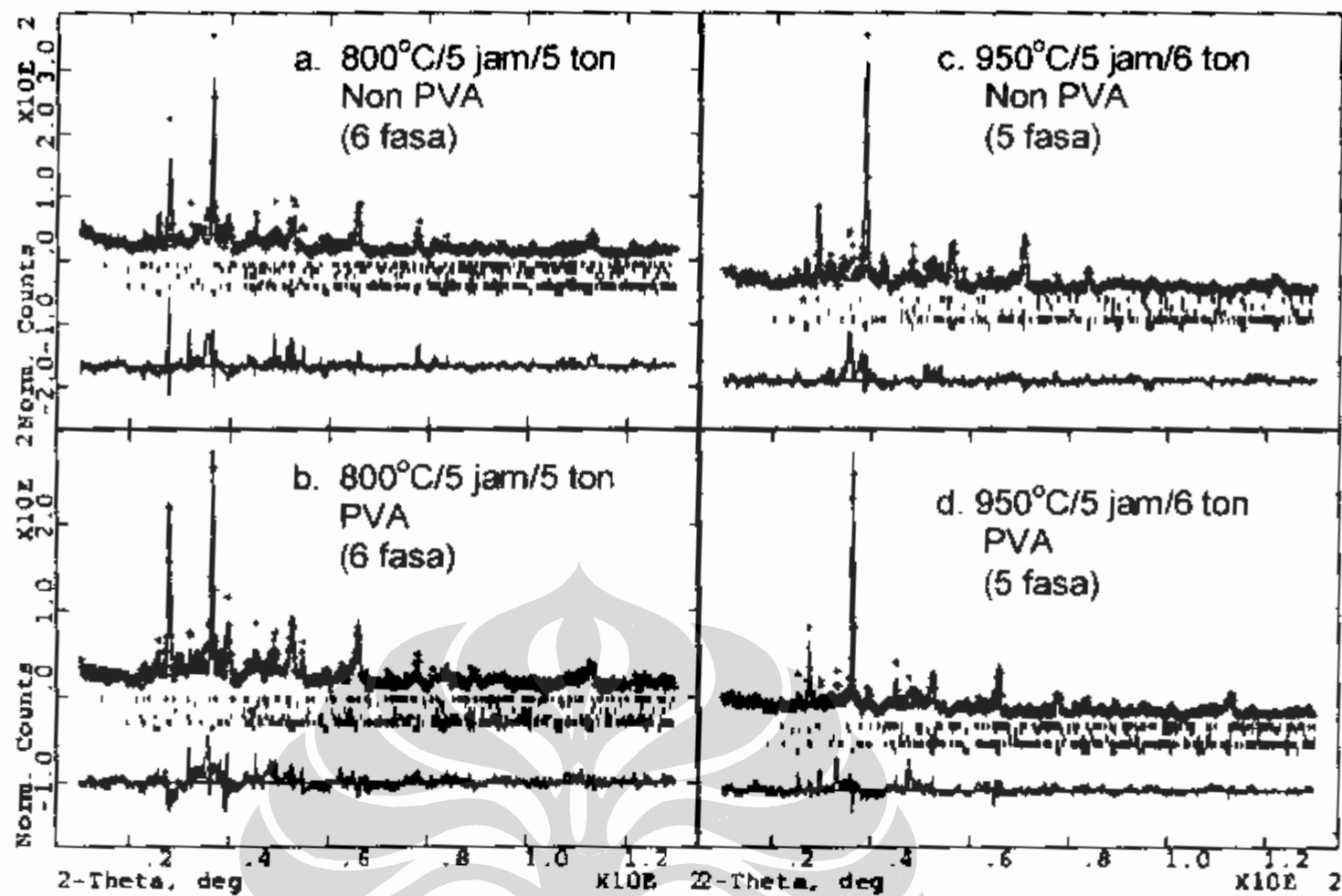
Tabel 3c Parameter struktur untuk BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang hanya mengalami perlakuan kalsinasi 900°C/9 jam. (Lihat gambar 23c untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Atom	Posisi - Z	Fraksi Atom Dlm Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dlm Semua Fasa (%)
1. BaTi <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> O <sub>3</sub> Tetragonal P4mm	Ba	0,46 (7)	1,00 (fix)	a = 3,997 (2) c = 4,017 (4)	69,63
	Ti	- 0,11 (8)	0,67(101)		
	O	0,81 (0)	1,00 (fix)		
	O	- 0,02 (0)	1,00 (fix)		
	Mn	- 0,11 (0)	0,33(101)		
2. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba	0,41 (3)	1,00 (fix)	a = 6,406 (6) b = 5,280 (6) c = 8,939 (8)	3,89
	C	0,78 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,89 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,74 (0)	1,00 (fix)		
	O	0,87 (6)	1,00 (fix)		
3. MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (0)	1,00 (fix)	a = 4,374 (8) c = 2,682 (1)	23,65
	O	0,00 (0)	1,00 (fix)		
4. TiO <sub>2</sub> Tetragonal I 41/amd	Ti	0,56 (4)	1,00 (fix)	a = 3,779 (5) c = 9,617 (52)	2,83
	O	0,23 (0)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$ = 4,132		Rp = 0,290			
Variabel = 38		WRp = 0,376			

Faktor pencocokan hasil perhitungan (reduced  $\chi^2$ ) yang ditunjukkan pada tabel 3 diatas menjelaskan bahwa seharusnya untuk gambar 3 (c) memiliki nilai yang lebih baik, dibandingkan dengan nilai pada gambar 3 (a) dan (b), namun ini adalah faktor kurang telitian pada saat menghaluskan (refinement). Seperti yang telah dijelaskan diatas bahwa berdasarkan penilaian pola difraksi sinar-x dan parameter struktur yang ada, maka pilihan kualitas bahan yang baik adalah bahan

yang mendapat kalsinasi pada temperatur 900 °C selama 9 (sembilan) jam .

Fasa lain (pengotor) pada perlakuan kalsinasi ini setelah dilakukan proses penghalusan ada 3 (tiga) yaitu : BaCO<sub>3</sub>, MnO<sub>2</sub> dan TiO<sub>2</sub>. Hal ini terjadi karena pada proses kalsinasi diperkirakan proses difusi belum berlangsung dengan sempurna sehingga fasa-fasa yang muncul masih merupakan fasa-fasa dari bahan dasar.



Gambar 4. Pola difraksi sinar-X yang mendapat perlakuan lengkap tetapi variasi suhu dan tekanan (Lihat tabel 4 untuk parameter struktur kristalnya)

Tabel 4a. Parameter struktur kristal untuk  $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$  yang mengalami perlakuan lengkap dengan suhu sintering  $800^\circ C/5$  jam/5 ton Non PVA. (Lihat gambar 4a untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Nama Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dalam Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dalam Semua Fasa (%)
1. $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$ Tetragonal P4mm	Ba	0,44 (0)	1,00 (fix)	a = 4,017 (3) c = 4,062 (6)	48,04
	Ti	- 0,15 (2)	0,36 (132)		
	O	0,81 (fix)	1,00 (fix)		
	O	- 0,02 (fix)	1,00 (fix)		
	Mn	- 0,15 (2)	0,64 (132)		
2. $BaCO_3$ Orthorombik Pnma	Ba	0,42 (2)	1,00 (fix)	a = 6,405 (25) b = 5,293 (29) c = 9,122 (53)	31,78
	C	0,88 (7)	1,00 (fix)		
	O	0,92 (fix)	1,00 (fix)		
	O	0,74 (fix)	1,00 (fix)		
	O	0,41 (fix)	1,00 (fix)		
3. $MnO_2$ Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,385 (13) c = 2,650 (13)	6,02
	O	0,00 (fix)	1,00 (fix)		
4. $TiO_2$ Tetragonal I 41/amd	Ti	0,52 (0)	1,00 (fix)	a = 3,781 (45) c = 9,468 (175)	1,80
	O	0,23 (60)	1,00 (fix)		

5. MnO <sub>2</sub> Orthorombik Pnma	Mn O <sub>1</sub> O <sub>2</sub>	0,02 (fix) 0,33 (fix) 0,79 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 10,44 (9) b = 2,740 (2) c = 4,390 (1)	11,12
6. OTi <sub>3</sub> Trigonal P312	O <sub>1</sub> O <sub>2</sub> O <sub>3</sub> O <sub>4</sub> Ti <sub>1</sub> Ti <sub>2</sub> Ti <sub>3</sub>	0,50 (fix) 0,50 (fix) 0,17 (fix) 0,17 (fix) 0,08 (fix) 0,25 (fix) 0,41 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 5,210 (18) c = 14,070 (97)	1,24
Rp = 0,236 WRp = 0,309 Reduced $\chi^2$ = 2,843 Variabel = 45					

Tabel 4b. Parameter struktur kristal untuk BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang mengalami perlakuan lengkap dengan suhu sintering 800<sup>o</sup>c/5 jam/5 ton PVA. (Lihat gambar 4b untuk difraktogramnya).

Nomor/Fasa	Nama Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dalam Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dalam Semua Fasa (%)
1. BaTi <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> O <sub>3</sub> Tetragonal P4mm	Ba Ti O O Mn	0,44 (9) - 0,08 (14) 0,81 (fix) - 0,02 (fix) - 0,08 (14)	1,00 (fix) 0,36 (116) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 0,64 (116)	a = 3,998 (2) c = 4,044 (2)	38,99
2. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba C O <sub>1</sub> O <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,41 (1) 0,83 (5) 0,92 (fix) 0,74 (fix) 0,41 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 6,418 (1) b = 5,291 (1) c = 8,931 (2)	32,24
3. MnO <sub>2</sub> Orthorombik Pnma	Mn O <sub>1</sub> O <sub>2</sub>	0,02 (fix) 0,33 (fix) 0,79 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 9,294 (15) b = 2,865 (4) c = 4,532 (3)	1,80
4. TiO <sub>2</sub> Tetragonal ( 41/amd	Ti O	0,52 (0) 0,18 (2)	1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 3,784 (0) c = 9,496 (2)	20,99
5. MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm	Mn O	0,00 (fix) 0,00 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 4,396 (2) c = 2,680 (2)	4,10
6. OTi <sub>3</sub> Trigonal P312	O <sub>1</sub> O <sub>2</sub> O <sub>3</sub> O <sub>4</sub> Ti <sub>1</sub> Ti <sub>2</sub> Ti <sub>3</sub>	0,50 (fix) 0,50 (fix) 0,17 (fix) 0,17 (fix) 0,08 (fix) 0,25 (fix) 0,41 (fix)	1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix) 1,00 (fix)	a = 5,141 (1) c = 14,308 (4)	1,88
Rp = 0,222 WRp = 0,290 Reduced $\chi^2$ = 4,205 Variabel = 56					

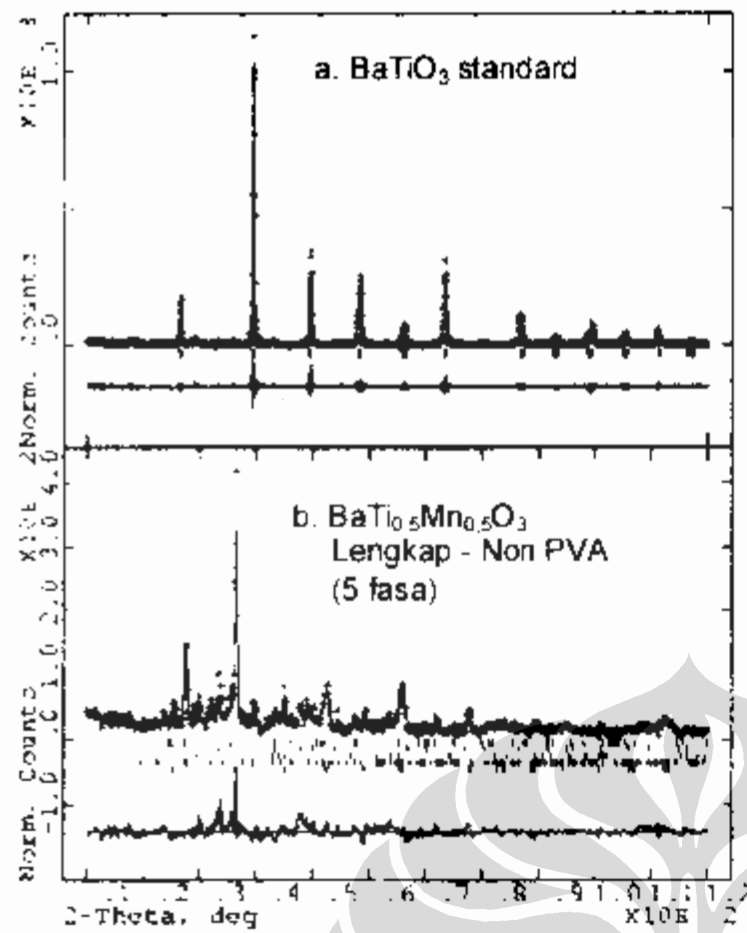


Tabel 4c. Parameter struktur kristal untuk  $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$  dengan perlakuan lengkap serta suhu sintering  $900^\circ\text{C}/5$  jam/6 ton Non PVA. (Lihat gambar 4c untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Nama Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dlm Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dlm Semua Fasa (%)
1. $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$ Tetragonal P4mm	Ba	0,44 (fix)	1,00 (fix)	a = 3,999 (3) c = 4,025 (6)	45,83
	Ti	- 0,13 (19)	0,46 (82)		
	O	0,81 (fix)	1,00 (fix)		
	O	- 0,02 (fix)	1,00 (fix)		
	Mn	- 0,13 (19)	0,54 (82)		
2. $BaCO_3$ Orthorombik Pnma	Ba	0,42 (14)	1,00 (fix)	a = 6,424 (11) b = 5,250 (10) c = 8,954 (18)	18,59
	C	0,76 (14)	1,00 (fix)		
	O <sub>1</sub>	0,92 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>2</sub>	0,74 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>3</sub>	0,38 (fix)	1,00 (fix)		
3. $TiO_2$ Tetragonal I 41/amd	Ti	0,52 (fix)	1,00 (fix)	a = 3,710 (13) c = 9,453 (54)	20,36
	O	0,21 (21)	1,00 (fix)		
4. $MnO_2$ Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,345 (5) c = 2,703 (5)	8,47
	O	0,00 (fix)	1,00 (fix)		
5. $Mn_3Ti_2$ Hexagonal P 63/mmc	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,820 (13) c = 8,103 (32)	6,75
	Mn	0,25 (fix)	1,00 (fix)		
	Ti	0,44 (fix)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$ = 2,175			Rp = 0,201		
Variabel = 45			WRp = 0,264		

Tabel 4d. Parameter struktur kristal untuk  $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$  dengan perlakuan lengkap serta suhu sintering  $900^\circ\text{C}/5$  jam/6 ton PVA. (Lihat gambar 4d)

Nomor/Fasa	Nama Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dlm Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dlm Semua Fasa (%)
1. $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$ Tetragonal P4mm	Ba	0,18 (23)	1,00 (fix)	a = 3,998 (2) c = 4,038 (4)	54,83
	Ti	- 0,35 (40)	0,40 (98)		
	O	0,81 (fix)	1,00 (fix)		
	O	- 0,02 (fix)	1,00 (fix)		
	Mn	- 0,35 (40)	0,60 (98)		
2. $BaCO_3$ Orthorombik Pnma	Ba	0,41 (9)	1,00 (fix)	a = 6,425 (13) b = 5,269 (10) c = 8,937 (18)	17,40
	C	0,83 (10)	1,00 (fix)		
	O <sub>1</sub>	0,92 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>2</sub>	0,74 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>3</sub>	0,49 (71)	1,00 (fix)		
3. $MnO_2$ Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,399 (12) c = 2,670 (6)	6,75
	O	0,00 (fix)	1,00 (fix)		
4. $Mn_3Ti_2$ Hexagonal P 63/mmc	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,871 (15) c = 7,936 (79)	16,84
	Mn	0,25 (fix)	1,00 (fix)		
	Ti	0,44 (fix)	1,00 (fix)		
5. $TiO_2$ Tetragonal I 41/amd	Ti	0,52 (fix)	1,00 (fix)	a = 3,782 (2) c = 9,485 (18)	4,18
	O	0,22 (6)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$ = 2,565			Rp = 0,234		
Variabel = 45			WRp = 0,301		



Gambar 5. Pola difraksi sinar-x (a) BaTiO<sub>3</sub> standard dan (b) BaMn<sub>0.5</sub>Ti<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> sampel terbaik. (Lihat tabel 5 dan 6 untuk parameter struktur kristalnya)

Dari pola grafik yang ditunjukkan tersebut, maka gambar 4 (c) menunjukkan kualitas yang terbaik dan dari gambar 4 juga diketahui ada 4 (empat) fasa pengotor yang sudah diketahui jenis fasanya, sedangkan fasa pengotor yang lain kelihatannya belum diketahui jenis fasanya walaupun telah diusahakan semaksimal mungkin memasukkan (mencocokkan) data jenis fasa yang berkorelasi dengan fasa utamanya.

Nilai parameter struktur dari BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang ditampilkan pada tabel. 4e sudah sesuai dengan pola difraksi yang

ditampilkan oleh gambar 4c. sehingga pada penelitian ini kualitas bahan yang terbaik adalah bahan dengan perlakuan 950°C/5 jam/6 ton/Non PVA dan dengan 4 (empat) fasa pengotor.

Setelah dipilih kualitas bahan yang terbaik (yaitu BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang disinter pada temperatur 900°C selama 5 jam dan dikompaksi dengan tekanan 6 ton tanpa PVA) maka hasil ini dibandingkan nilai parameter strukturnya dengan BaTiO<sub>3</sub> murni. Dari tabel.4 didapatkan bahwa nilai parameter struktur BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> yang didapat dari hasil penghalusan (refine) menunjukkan nilai yang sudah mendekati nilai parameter struktur sesungguhnya dari BaTiO<sub>3</sub> standard, khususnya faktor pencocokan (reduced  $\chi^2$ ) nya karena semakin kecil nilai pencocokan tersebut maka semakin baik pula proses pencocokan yang telah dilakukan. Pada percobaan terjadinya proses substitusi antara atom titanium (Ti) dan mangan (Mn), hal ini dimungkinkan karena selisih jari-jari atom keduanya tidak terlalu besar (Ti = 0,145 nm dan Mn = 0,112 nm). Hal tersebut diperjelas dengan nilai fraksi (faktor hunian) dari Ti dan Mn yang didapat dari hasil perhitungan, yaitu bahwa masing-masing atom Ti dan Mn dianggap memiliki peluang sama untuk menempati posisi setengah dari posisi atom Ti yang sesungguhnya, sehingga bila nilai fraksi yang diperoleh dimasukkan kerumusan senyawa BaTi<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>O<sub>3</sub> maka rumusan tersebut menjadi BaMn<sub>0.5</sub>Ti<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> dan ini telah sesuai dengan perkiraan pada awal percobaan ini.

Tabel. 5 Parameter struktur kristal BaTiO<sub>3</sub> standard dari E-Merck  
(Lihat gambar 5a untuk difraktogramnya).

Atom	BaTiO <sub>3</sub> standard				
	Posisi Z	Fraksi atom	Parameter kisi	Grup ruang	Sistem kristal
Ba	0,50 (1)	1,000 (fix)	a = 3,994 (0)	P 4mm	Tetragonal
Ti	- 0,02 (1)	1,001 (19)	c = 4,022 (1)		
O	0,52 (2)	1,000 (fix)			
O	- 0,03 (1)	1,000 (fix)			
Variabel	14				
Red. $\chi^2$	1,665				
Rp	0,219				
Rwp	0,329				

Tabel. 6 Parameter struktur kristal untuk BaMn<sub>0,5</sub>Ti<sub>0,5</sub>O<sub>3</sub>.  
(Lihat gambar 5b untuk difraktogramnya)

Nomor/Fasa	Nama Atom	Posisi Z	Fraksi Atom Dlm Fasa (mol)	Parameter Kisi	Fraksi Berat Dlm Semua Fasa (%)
1 BaMn <sub>0,5</sub> Ti <sub>0,5</sub> O <sub>3</sub> Tetragonal P4mm	Ba	0,44 (fix)	1,00 (fix)	a = 3,999 (3) c = 4,025 (6)	45,83
	Ti	- 0,13 (19)	0,46 (82)		
	O	0,81 (fix)	1,00 (fix)		
	O	- 0,02 (fix)	1,00 (fix)		
	Mn	- 0,13 (19)	0,54 (82)		
2. BaCO <sub>3</sub> Orthorombik Pnma	Ba	0,42 (14)	1,00 (fix)	a = 6,424 (11) b = 5,250 (10) c = 8,954 (18)	18,59
	C	0,76 (14)	1,00 (fix)		
	O <sub>1</sub>	0,92 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>2</sub>	0,74 (fix)	1,00 (fix)		
	O <sub>3</sub>	0,38 (fix)	1,00 (fix)		
3 TiO <sub>2</sub> Tetragonal I 41/amd	Ti	0,52 (fix)	1,00 (fix)	a = 3,710 (13) c = 9,453 (54)	20,36
	O	0,21 (21)	1,00 (fix)		
4 MnO <sub>2</sub> Tetragonal P 42/mnm	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,345 (5) c = 2,703 (5)	8,47
	O	0,00 (fix)	1,00 (fix)		
5. Mn <sub>3</sub> Ti <sub>2</sub> Hexagonal P 63/mmc	Mn	0,00 (fix)	1,00 (fix)	a = 4,820 (13) c = 8,103 (32)	6,75
	Mn	0,25 (fix)	1,00 (fix)		
	Ti	0,44 (fix)	1,00 (fix)		
Reduced $\chi^2$		= 2,175		Rp = 0,201	
Variabel		= 45		WRp = 0,264	

## Kesimpulan

Dari hasil sintesis dan analisa yang telah dilakukan pada proses pembentukan  $\text{BaMn}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$  dari bahan dasar  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{MnO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ , maka telah didapatkan metode yang terbaik yaitu bahan dengan kalsinasi pada suhu  $300^\circ\text{C}$  selama 1 jam, lalu dikompaksi dengan tekanan 6 ton kemudian disintering pada suhu  $950^\circ\text{C}$  selama 5 jam.

Dari hasil olahan pencocokan dengan menggunakan GSAS didapatkan bahan dengan rumusan  $\text{BaMn}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$  tipe struktur perovskite  $\text{BaTiO}_3$  sebagai fasa utama dan 4 (empat) fasa pengotor dengan fraksi berat masing-masing yaitu :  $\text{BaCO}_3$  (45,83%),  $\text{MnO}_2$  (8,47%),  $\text{TiO}_2$  (20,36%) dan  $\text{Mn}_2\text{Ti}_2$  (6,75%) serta masing-masing mempunyai grup ruang :  $P4mm$ ,  $Pnma$ ,  $P42/mnm$ ,  $Pbca$  dan  $P63/mmc$ . Sebagai fasa utama parameter kisinya  $a$  dan  $c$  masing-masing adalah  $3,999 \text{ \AA}$  dan  $4,025 \text{ \AA}$  dan faktor pencocokannya (reduced  $\chi^2$ ) adalah 2,175 dengan 45 variabel.

Tahapan penelitian berikutnya adalah pengukuran konstanta dielektrik dan melakukan perbaikan data perhitungan khusus untuk penghalusan dari bahan yang dikalsinasi selama 9 (sembilan) jam dan suhu  $900^\circ\text{C}$  yang masih belum cukup memuaskan, sehingga diperoleh faktor pencocokan yang lebih baik dibandingkan dengan kalsinasi selama 3 dan 4,5 jam pada suhu yang sama.

## Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan banyak terimakasih kepada Bapak I. Wahyono, Sulistioso GI, Anthonius Sitompul dari

Pusat Penelitian dan Pengembangan Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Bahan, Badan Tenaga Nuklir Nasional, Serpong atas kerjasamanya dan bantuannya sehingga penelitian ini dapat berlangsung dengan baik. Penelitian ini dibiayai sebagian dari dana No.32/SPK/RUT/BPPT/IV/98 Kantor Menteri Negara Riset dan Teknologi Republik Indonesia.

## Daftar Pustaka

- 1 Franco Jona, G. Shirane., *Ferroelectric Crystal*, Pergamon Press, Oxford, 1962.
- 2 Y. M. Chiang, Dunbar P. Birnie III, W. David Kingery., *Physical Ceramic, Principle for Ceramic and Engineering*, John Wiley and Sons, Inc., New York, 1997 : 38-41.
- 3 The Japan Society of Applied Physics, Serial Number 468., *Surface and Domain Structure of Pure  $\text{PbO}_3$ , Mn-Doped  $\text{PbO}_3$  and  $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{Ti}_{0,09}\text{O}_3$  Single Crystals by Atomic Force Microscopy*, Vol.36 No.9B, September, 1997.
- 4 W. D. Callister, Jr., *Material Science and Engineering and Introduction*, 3<sup>rd</sup> Ed., John Wiley and Sons, Inc., New York, 1994 : 9 - 14, 623 - 633.
- 5 C. Giacovazzo *et al.*, *Fundamentals of Crystallography*, C. Giacovazzo (ed), International Union of Crystallography, Oxford University Press, 1992.
- 6 Allen C. Larson dan Robert B. Von Dreele., *GSAS Training Manual*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, 1994.
- 7 T. Hahn (Ed)., *International Tables for Crystallography*, Vol. A Space Group Symmetry, 4<sup>th</sup> ed, Klumer Academic Publishing, London, 1995.