



TUGAS AKHIR - SF 141501

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SERBUK $ZrSiO_4$
DENGAN METODE SOL-GEL**

**ALFA DINAR CALLISTA PUTRI
NRP 11 13 100 108**

Dosen Pembimbing
Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.
NIP. 19660224 19902.1.001

Departemen Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya 2017



TUGAS AKHIR - SF 141501

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SERBUK $ZrSiO_4$
DENGAN METODE SOL-GEL**

**ALFA DINAR CALLISTA PUTRI
NRP 11 13 100 108**

**Dosen Pembimbing
Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.
NIP. 19660224 19902.1.001**

**Departemen Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya 2017**



FINAL PROJECT- SF 141501

**SYNTHESIS AND CHARACTERISTICS OF $ZrSiO_4$
POWDER BY SOL-GEL PROCESSING METHOD**

**ALFA DINAR CALLISTA PUTRI
NRP 11 13 100 108**

Advisor

**Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.
NIP. 19660224 19902.1.001**

**Physics Departement
Faculty Mathematics and Natural Science
Sepuluh Nopember Institute of Technology
Surabaya 2017**

LEMBAR PENGESAHAN

SINTESIS DAN KARAKTERISASI SERBUK $ZrSiO_4$ DENGAN METODE SOL-GEL

TUGAS AKHIR

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat Memperoleh
Gelar Sarjana Sains
pada

Bidang Studi Material

Program Studi S-1 Departemen Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :

ALFA DINAR CALLISTA PUTRI

11 13 100 108

Disetujui oleh Pembimbing Tugas Akhir:

Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D. (.....)

NIP. 19660224 199021001



Surabaya, Juni 2017

SINTESIS DAN KARAKTERISASI SERBUK ZrSiO₄ DENGAN METODE SOL-GEL

Penulis : Alfa Dinar Callista Putri
NRP : 1113100108
Departemen : Fisika FMIPA ITS
Pembimbing : Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.

Abstrak

Sintesis serbuk ZrSiO₄ menggunakan bahan-bahan prekursor komersial serbuk ZrCl₄ (zirkonium klorid) dan larutan TEOS (*tetraethylorthosilicate*) telah selesai dilakukan. Sintesis meliputi pemberian aktivasi mekanik dengan penggilingan menggunakan *Planetary Ball Mill* dan penambahan PVA sebagai katalisator lalu dikalsinasi pada temperatur 900-1300 °C dengan waktu penahanan 10 jam. Karakterisasi dengan *X-Ray Fluorescence (XRF)* dilakukan untuk mengetahui kadar unsur yang terkandung di dalam sampel. Karakterisasi fasa dilakukan dengan difraksi sinar-X kemudian dianalisis secara kualitatif dan kuantitatif. Analisis kuantitatif menunjukkan terbentuk fasa zirkonia tetragonal dengan komposisi fasa 100% pada temperatur kalsinasi 900-1100 °C dengan ukuran kristal 4 nm, 7 nm, dan 18 nm, kemudian terbentuk fasa tunggal zirkon pada temperatur kalsinasi 1200 °C dengan ukuran kristal 170 nm, dan zirkon mengalami dekomposisi pada temperatur 1300 °C menjadi 93% fasa zirkon, 3% fasa zirkonia tetragonal dan 4% fasa kristobalit rendah, dengan ukuran kristal pada masing-masing fasa, yaitu 80 nm, 91 nm, dan 33 nm. Uji SEM menampilkan mikrografi pertumbuhan ukuran butir pada serbuk.

Kata kunci: Zirkon, TEOS, ZrCl₄, Sol-Gel, Aktivasi Mekanik, PVA, Dekomposisi

SYNTHESIS AND CHARACTERISTICS OF $ZrSiO_4$ POWDER BY SOL-GEL PROCESSING METHOD

Name : Alfa Dinar Callista Putri
NRP : 1113100108
Departemant : Fisika FMIPA ITS
Advisor : Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.

Abstract

The synthesis of $ZrSiO_4$ powder using commercial precursor materials of $ZrCl_4$ powder (zirconium chloride) and TEOS (tetraethylorthosilicate) solutions has been completed. The synthesis includes implicating mechanical activation by a milling process using Planetary Ball Mill, adding PVA as the catalyst and being calcined at the temperatur 900-1300 °C with holfing time in 10 hour. Characterization by X-Ray Flourescence (XRF) is performed to determine the element levels contained in the sample. Phase characterization is done by doing the X-rays diffraction then analyzing it qualitatively and quantitatively. Quantitative analysis shows that a formation of tetragonal zirconia phase emerged with 100% phase composition at 900-1100 °C calcination temperature with crystal sizes of 4 nm, 7 nm, and 18 nm, a formation of single phase zircon also emerged at 1200 °C calcination temperature with 170 nm crystal size, and a zircon decomposed from 1300 °C to 93% of zircon phase, 3% tetragonal zirconia phase, and 4% low-cristobalite phase with the crystal size at each phase are 80 nm, 91 nm, and 33 nm. The SEM results the micrographiz growth of grain size on powder.

Keywords : Zircon, TEOS, $ZrCl_4$, Sol-Gel, Mecahnnical Activation, PVA, Decomposition

KATA PENGANTAR

Puji syukur Penulis panjatkan kehadirat Allah SWT atas berkat limpahan rahmat, taufik, dan hidayah-Nya penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir sebagai syarat wajib untuk memperoleh gelar Sarjana Sains (S.Si) pada jurusan Fisika FMIPA ITS Surabaya dengan judul:

“SINTESIS DAN KARAKTERISASI SERBUK $ZrSiO_4$ DENGAN METODE SOL-GEL”

Penulis menyadari bahwa terselesaikannya penyusunan Tugas Akhir ini tidak terlepas dari bantuan dan dukungan dari berbagai pihak, maka pada kesempatan ini penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Prof. Suminar Pratapa, Ph.D. selaku dosen pembimbing Tugas Akhir yang senantiasa memberikan bimbingan, wawasan, dan motivasi sehingga penulis dapat menyelesaikan tugas akhir ini.
2. Kakak Musyarofah selaku pembimbing dan “pembimbing kedua” yang sangat luar biasa dalam memberi masukan, dukungan, bimbingan dan wawasan sehingga penulis dapat menyelesaikan tugas akhir ini.
3. Bapak Hadi Purnomo, ibu Subingah, dan adek Savira N tercinta yang senantiasa memberikan do'a serta dukungan moral, material dan spiritual terhadap keberhasilan penulis menyelesaikan Tugas Akhir ini.
4. Dr. Yono Hadi Pramono., M.Eng, selaku Ketua Jurusan Fisika FMIPA ITS yang telah memberikan kemudahan sarana kepada penulis selama kuliah sampai terselesaikannya Tugas Akhir ini.
5. Seluruh Staf Pengajar dan laboran di Jurusan Fisika FMIPA ITS, terimakasih atas pendidikan, ilmu pengetahuan, dan motivasi yang telah diberikan.

6. Rekan-rekan seperjuangan satu tim Zirkon : Mbak Gaby Elsandika, Mbak Fikriyatul dan Novia Dwi Lestari, atas ilmu, motivasi, dan bantuannya dalam eksperimen.
7. Tim penelitian satu dosen pembimbing, Bu Upik N B, Mbak Nur Aini, Pak Irhamsyah, Pak Husein, Mas Roni, Mbak Vamellia, Mbak Arma Yani, Mas Budi, Mas Allif Rosydi Hilmi, Mas N. F. Muwqaor, dan Afyra Chairunnisa, Nihlatunnur, yang turut membantu dalam penelitian dan diskusi di laboratorium.
8. Mas Amrul Asofa, rekan bisnis, yang selalu memberikan do'a dan motivasi untuk segera menyelesaikan Tugas akhir ini.
9. Teman-teman: Novia Dwi Lestari, Mbak Fitriana, Ika Widya, Gilang Baswara, Nikmatul A, dan Afra Basyirah yang selalu memberi penyemangat dan dapat dimintai tolong tanpa kenal waktu.
10. Teman-teman SUPERNOVA 2013 atas kekeluarganya.

Penulis menyadari bahwa dalam proses penyusunan laporan ini terdapat kesalahan. Oleh karena itu, penulis berharap akan menerima kritik dan saran yang bersifat membangun demi kesempurnaan penulisan Tugas Akhir ini. Semoga penelitian ini dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Surabaya, Juni 2017

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL.....	i
LEMBAR	
PENGESAHAN.....	Error!
Bookmark not defined.	
Abstrak.....	iv
Abstract.....	v
KATA PENGANTAR.....	vi
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR.....	x
DAFTAR TABEL.....	xii
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Permasalahan.....	4
1.3 Tujuan Penelitian.....	4
1.4 Batasan Masalah.....	5
1.5 Manfaat Penelitian.....	5
1.6 Sistematika Penulisan.....	5
BAB II KAJIAN PUSTAKA.....	7
2.1 Zirkon ($ZrSiO_4$)	7
2.2 Pembentukan Fasa Zirkon	10
2.3 Aktivasi Mekanik	14
2.4 Polivinil Alkohol (PVA)	15
2.5 Metode Sol-Gel	16
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	19

3.1	Prosedur Kerja	19
3.1.1	Sintesis	19
3.1.2	Karakterisasi Serbuk Zirkon ($ZrSiO_4$).....	21
	Karakterisasi Kandungan Unsur	21
	Karakterisasi Struktur	21
	Karakterisasi Mikrostruktur	22
3.2	Diagram Alir Penelitian	23
BAB IV	Hasil dan Pembahasan.....	25
4.1	Kandungan Unsur	25
4.2	Analisis Fasa	25
4.3	Mikrostruktur	37
BAB V	PENUTUP.....	41
5.1	Kesimpulan	41
5.2	Saran	42
DAFTAR PUSTAKA.....		43
LAMPIRAN.....		47
	HASIL LUARAN RIETICA	47
	HASIL LUARAN MAUD.....	51
BIOGRAFI PENULIS.....		55

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2. 1 Struktur Ikatan $ZrO_2 - SiO_2$	8
Gambar 2. 2 Silika dan Zirkonia yang Berdifusi Membentuk Zirkon	8
Gambar 2. 3 Struktur Kristal dari $ZrSiO_4$	9
Gambar 2. 4 Representasi Skematik Dua Dimensi Partikel $ZrO_2.SiO_2$	11
Gambar 2. 5 Diagram Fasa $ZrO_2.SiO_2$, Curtis dan Sowman	13
Gambar 2. 6 Diagram Fasa $ZrO_2.SiO_2$, setelah Butterman dan Foster.....	14
Gambar 2. 7 Mekanisme Kerja Planetary Ball Milling	15
Gambar 2. 8 Rumus Struktur Poli(vinil Alkohol)	16
Gambar 2. 9 Proses Sol-Gel	17
Gambar 3. 1 Diagram Alir Penelitian.....	23
Gambar 4.1 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi $Cu-K\alpha$) Sampel ZS (serbuk setelah sintesis dengan metode sol- gel) dan ZSP (serbuk yang telah setelah penambahan PVA dan penggilingan)	26
Gambar 4. 2 Analisis DSC/TGA Sampel Serbuk ZSP.....	27
Gambar 4. 3 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi $Cu-K\alpha$) Serbuk Zirkon ZSP dengan temperatur Kalsinasi 900- 1300 °C dengan Waktu Penahanan 10 jam, ket: Z= zirkon, t=zirkonia tetragonal, C= kristobalit	28
Gambar 4. 4 Contoh Pola Penghalusan pada Sampel Serbuk ZSP dengan Temperatur Kalsinasi 1200 °C dengan Waktu Tahan 10 jam.	30
Gambar 4. 5 Contoh Pola Penghalusan dengan Software MAUD pada Sampel Serbuk ZSP dengan Temperatur kalsinasi 1200 °C.....	36

Gambar 4. 6 Citra SEM Serbuk Zirkon ZSP : (a) Serbuk ZS, sebelum digiling; (b) Serbuk ZSP, ditambahkan PVA kemudian digiling 5jam.38

Gambar 4. 7 Citra SEM Serbuk Zirkon ZSP Kalsinasi pada Temperatur: (a) 900 °C (b) 1000 °C (c) 1100 °C (d) 1200 °C (e) 1300 °C.....39

DAFTAR TABEL

Tabel 2. 1 Ringkasan Energi Gibbs dari Berbagai Penelitian	10
Tabel 2. 2 Perbandingan Hasil Sintesis Serbuk Zirkon dengan Metode Sol-Gel pada berbagai Penelitian.....	18
Tabel 4. 1 Komposisi Unsur pada Sampel Serbuk Zirkon ZS sebelum Kalsinasi	25
Tabel 4. 2 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) terhadap Kandungan Fasa pada Serbuk Zirkon ZSP setelah Kalsinasi	29
Tabel 4. 3 Hasil FoM Berdasarkan Analisis Software Rietica.....	31
Tabel 4. 4 Luaran MAUD Serbuk ZSP setelah Kalsinasi 900-1300 °C dengan Penahanan selama 10 jam	36

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Zirkon merupakan material penting dalam industri keramik, misalnya karena diaplikasikan pada industri keamanan nuklir, mikroelektronik, proteksi lapisan, *fuel cells*, abrasif, sensor oksigen, dan sebagai bahan pengecoran logam (Poernomo, 2012). Dalam bidang industri perhiasan atau optik, zirkon memiliki peran khusus karena memiliki indeks bias yang relatif tinggi, yaitu 1,92, sehingga dapat digunakan sebagai material pengedap cahaya (Focke dkk., 2002). Namun saat ini zirkon sintetik masih diperoleh dari hasil proses pada temperatur kalsinasi tinggi dan tidak sederhana.

Zirkon (ZrSiO_4) memiliki struktur gabungan senyawa zirkonia (ZrO_2) dan silika (SiO_2), atau $\text{ZrO}_2 \cdot \text{SiO}_2$. Kombinasi refraktori tinggi (stabil pada temperatur 1676 ± 7 °C (Kaiser dkk., 2008), ekspansi termal rendah (5,3 ppm/°C antara 25 °C hingga 1500 °C), dan konduktivitas panas rendah, yaitu $6,1 \text{ W/m}^\circ\text{C}^{-1}$ pada temperatur 100 °C dan $4,0 \text{ W/m}^\circ\text{C}^{-1}$ pada temperatur 1400 °C (Aksel, 2002) merupakan sifat unik yang dimiliki oleh zirkon (Shoyama dan N. Matsumoto, 1998). Ditinjau dari sifat listrik-magnetnya, zirkon adalah nonkonduktor dan nonmagnetik, yang dapat dengan mudah dipisahkan dengan mineral berat lainnya dengan memanfaatkan perbedaan berat jenis, perbedaan sifat magnetik, dan perbedaan sifat konduktifnya (Poernomo, 2012). Struktur kristal zirkon sangat baik menjadi material dalam bidang refraktori, selain memiliki sifat tahan korosi dengan potensial defek yang rendah, zirkon sangatlah mudah dalam pembentukannya. Zirkon juga memiliki ketahanan kejut yang lebih baik daripada alumina dan mulit (Du dkk., 1999).

Pembuatan serbuk zirkon murni tidak mudah dan biasanya memerlukan perlakuan panas hingga mencapai suhu 1500 °C (Shoyama dan N. Matsumoto, 1998). Berdasarkan diagram fasa, pembentukan zirkon terjadi pada temperatur 1700 °C. Dalam perkembangannya, terdapat beberapa cara pembuatan serbuk zirkon, di antaranya adalah metode-metode *solid reaction*, hidrotermal temperatur rendah, mikroemulsi, reaksi kopresipitasi, dan sol-gel. Perhatian para peneliti saat ini juga tertuju pada sintesis serbuk zirkon berukuran nanometrik. Meskipun mudah dalam pembuatan, zirkon dengan kemurnian tinggi sangat sulit didapatkan dengan metode *solid reaction* pada temperatur sekitar 1450-1500 °C (Wang dkk., 2011) dan ukurannya tidak nanometrik. Dari sisi bahan dasar, metode dengan menggunakan bahan komersial terbukti lebih mudah dalam pembentukan zirkon berukuran orde nanometer, misalnya penggunaan TEOS dengan $ZrO(NO_3)_2 \cdot xH_2O$ menghasilkan zirkon dengan ukuran 50 nm (Veytizou dkk., 2000).

Metode sol-gel diharapkan dapat menghasilkan serbuk zirkon murni pada temperatur lebih rendah, dari temperatur stabil, yaitu 1676 ± 7 °C (Kaiser et al., 2008). Contohnya adalah serbuk zirkon dihasilkan dengan metode sol-gel dengan mencampurkan $ZrOCl_2$ dengan silika koloid pada pH 9,5 dan dipanaskan pada temperatur 500-1300 °C dengan laju 10 °/menit (Itoh, 1992). Hasilnya adalah terbentuknya fasa zirkon dan zirkonia tetragonal pada temperatur 1300 °C. Penelitian lain memvariasikan temperatur kalsinasi 1100-1500 °C terbentuk zirkon 90% pada temperatur kalsinasi 1500 °C dengan mencampurkan $ZrOCl_2$ dengan TEOS kemudian diberi 2,5 mol% Y_2O_3 dengan 3 wt.% *zircon seeds* (Du et al., 1999). Kemudian Veytizou dkk., (2000) menggunakan bahan prekursor TEOS dan $ZrO(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ yang disintesis pada temperatur 100 °C selama 24 jam dan variasi temperatur

kalsinasi 600-1300 °C selama 6 jam menghasilkan fase zirkon pada temperatur kalsinasi 1300 °C, namun masih terdapat fasa zirkonia dengan struktur kristal tetragonal pada temperatur tersebut. Pada penelitian selanjutnya, zirkonia amorf dan TEOS dijadikan sebagai bahan-bahan dasar kemudian dikalsinasi dari temperatur 1000-1500 °C menghasilkan serbuk zirkon yang multifasa (fasa kristobalit dan zirkonia tetragonal) pada temperatur 1400 °C selama 15 jam (Alarcón, 2000). Pada tahun 2014, Hsueh-Liang dkk menggunakan zirconium (IV) nitrate dengan TEOS dikalsinasi pada variasi temperatur 673-1473 K selama 2 jam terbentuk fasa tunggal zirkonia tetragonal pada kalsinasi 1173-1373 K, dan zirkonia tetragonal berubah fasa menjadi zirkonia monoklinik pada temperatur 1473 K selama 2 jam (Hsueh-Liang dkk., 2014). Jadi, sejauh ini pada peneliti menggunakan bahan komersial dalam menghasilkan zirkon dengan kemurnian tinggi, namun temperatur sintesisnya serendah-rendahnya adalah 1300 °C.

Penelitian terdahulu belum menemukan pembentukan serbuk zirkon dengan bahan prekursor komersial dengan metode sol-gel pada temperatur kalsinasi di bawah 1300 °C. Selain itu, penelitian terdahulu hanya memberikan perlakuan dengan memvariasikan temperatur kalsinasi pembentukan zirkon, atau memberikan katalisator berupa yttria (Y_2O_3) bahkan *zircon seeds* untuk pemercepat pembentukan zirkon.

Berbagai penelitian terdahulu banyak menggunakan PVA sebagai *binder*, tetapi ada juga yang menggunakan sebagai matriks polimer dengan salah satu kemampuannya bersifat adesif, atau sebagai perekat yang memiliki ketahanan terhadap minyak dan pelumas. Hal ini yang dimanfaatkan dalam pemercepat pembentukan zirkon murni saat diberi panas dengan dikalsinasi untuk menghasilkan energi yang dibutuhkan oleh inisiator untuk menjadi radikal bebas (El Discha and Rahmania A., 2014). Pemberian PVA

sebagai katalisator sangat mempengaruhi pertumbuhan kristal dengan cara masuk (terserap) secara cepat ke sisi-sisi dan mempengaruhi pertumbuhan suatu bidang (Peko dkk., 2010). Serbuk amorf sebelum dikalsinasi diberi katalisator berupa PVA dan diberi aktivasi mekanik dengan penggilingan menggunakan *planetary ball mill*. Aktivasi mekanik dari penggilingan untuk dihasilkan reaktan dengan energi permukaan yang tinggi (*high surface energy*) (Emadi dkk, 2015), sehingga fasa yang diinginkan dapat terbentuk pada temperatur kalsinasi yang lebih rendah. Terbentuknya fasa tersebut disebabkan seiring dengan meningkatnya kecepatan difusi dan homogenitas partikel yang lebih tinggi (Ahmadazeh dkk., 2015).

Dari hal tersebut, penelitian ini fokus pada penggunaan bahan komersial, yaitu $ZrOCl_2 \cdot 6H_2O$ dan TEOS ($Si(C_2H_5O)_4$) ditambahkan PVA 3 wt.% sebagai katalisator dan pemberian aktivasi mekanik dengan penggilingan dalam *planetary ball mill* selama 5 jam serta dikalsinasi pada variasi temperatur 900-1300 °C.

1.2 Rumusan Permasalahan

Permasalahan pada penelitian ini adalah:

1. Apa fasa-fasa yang terbentuk pada sintesis dengan metode sol-gel dua prekursor, yaitu $ZrOCl_2 \cdot 6H_2O$ dan TEOS ($Si(C_2H_5O)_4$) setelah kalsinasi antara 900-1300 °C dengan waktu penahanan 10 jam?
2. Berapakah ukuran kristal $ZrSiO_4$ menurut analisis data difraksi sinar-X? Bagaimana morfologi partikelnya dikaji menggunakan data mikrofografi SEM?

1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan rumusan permasalahan di atas, tujuan dari penelitian ini adalah:

1. Untuk mengetahui pengaruh kalsinasi pada variasi temperatur 900-1300 °C dengan waktu penahanan

10 jam terhadap fasa dan ukuran kristal yang terbentuk pada sintesis dengan metode sol-gel dua prekursor, yaitu $ZrOCl_2 \cdot 6H_2O$ dan TEOS ($Si(C_2H_5O)_4$), dikaji melalui analisis data difraksi sinar-X.

2. Untuk mengetahui pengaruh kalsinasi pada variasi temperatur 900-1300 °C dengan waktu penahanan 10 jam terhadap mikrografi kristal.

1.4 Batasan Masalah

Batasan masalah pada penelitian ini adalah:

1. Prekursor komersial yang digunakan, yaitu serbuk $ZrCl_4$ (Merck KGaA, M= 233,04 g/mol) dan larutan TEOS (Sigma Aldrich, Co, reagent grade 98%, d= 0,933 g/ml, MW=208,33 g/mol).
2. Waktu pencampuran bahan-bahan prekursor, yaitu 24 jam dengan temperatur 100 °C dan pH = 11.
3. Komposisi *Polyvinyl Alcohol* (PVA) sebesar 3 wt.%.
4. Waktu penggilingan dengan *Planetary Ball Milling* selama 5 jam.
5. Variasi temperatur kalsinasi yang digunakan adalah 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1200 °C, dan 1300 °C dengan waktu penahanan 10 jam., dengan rentang kenaikan 5 °C/menit.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini adalah memberikan informasi mengenai pembuatan serbuk zirkon ($ZrSiO_4$) murni yang diperoleh dari hasil sintesis menggunakan bahan prekursor komersial.

1.6 Sistematika Penulisan

Penulisan Tugas Akhir ini terdiri dari abstrak yang berisi gambaran umum dari penelitian. Bab I pendahuluan memuat latar belakang, perumusan masalah, tujuan

penelitian, manfaat penelitian, dan sistematika penulisan. Bab II tinjauan pustaka menjelaskan teori-teori yang menjadi acuan pada penelitian. Bab III berisi metodologi penelitian menjelaskan alat dan bahan serta langkah kerja dalam penelitian. Bab IV hasil penelitian dan pembahasannya, dan Bab V kesimpulan dan saran.

BAB II KAJIAN PUSTAKA

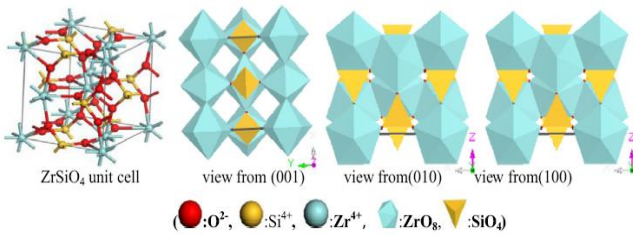
2.1 Zirkon ($ZrSiO_4$)

Zirkon ($ZrSiO_4$) dengan struktur tetragonal pada umumnya memiliki ukuran satuan unit $a=0,667$ nm, $b=0,667$ nm, $c= 0,5982$ nm ini memiliki grup ruang I_4/amd dengan nomor atom $Z=4$ (Srikanth dkk., 2015). Zirkon dikenal sebagai material yang sangat tua dan rentan terhadap pelapukan baik secara kimiawi dan mekanik. Ketersediaan material zirkon yang bercampur dengan oksida memiliki ketertarikan pada sifat fisika-kimia, seperti stabilitas thermal dan kimia yang tinggi, kekuatan mekanik dan lapisan yang bersifat asam merupakan keunggulan yang dimiliki oleh struktur yang berbahan dasar zirkonium (Zr) dan silika (Si) ini (Skoda dkk., 2015).

Stabilitas kimia pada zirkon menghasilkan nilai koefisien ekspansi termal yang sangat rendah ($5,3$ ppm/ $^{\circ}C$ antara 25 $^{\circ}C$ hingga 1500 $^{\circ}C$), dan koefisien konduktivitas panas rendah ($6,1$ W/ $m^{\circ}C^{-1}$ pada temperatur 100 $^{\circ}C$ dan $4,0$ W/ $m^{\circ}C^{-1}$ pada temperatur 1400 $^{\circ}C$) (Aksel, 2002). Massa jenis dari pasir zirkon murni adalah $4,63$ g/ cm^3 dengan warna bervariasi mulai dari kekuningan, kecoklatan, tidak berwarna, merah muda, kemerahan, dan kadang-kadang berwarna hijau, biru atau hitam (Elsner, 2013).

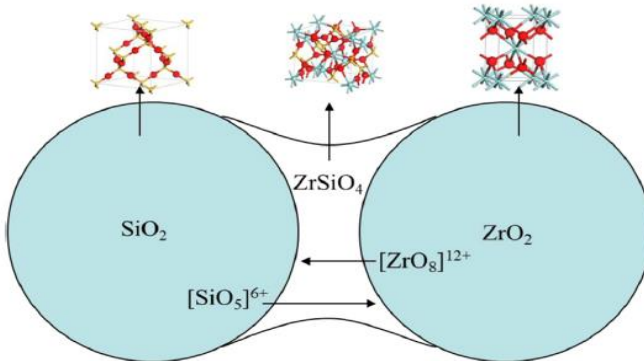
Material yang banyak bermanfaat terutama digunakan dalam industri temperatur tinggi ini, umumnya terbentuk dari perpindahan listrik maupun panas pada silikon oksida (SiO_2) dan zirkonium oksida (ZrO_2). Karena zirkon memiliki kelarutan dalam aquades, larutan asam, dan larutan alkaline yang sangat tinggi (Mahmoud dkk., 2015). Zirkon saat diberi perlakuan panas memiliki ketahanan *thermal shock* yang lebih bagus daripada alumina dan mullit dan tidak terpengaruh berubah strukturnya hingga

mencapai temperatur 1676 °C disebabkan zirkon menunjukkan ikatan kimia yang tidak inert.



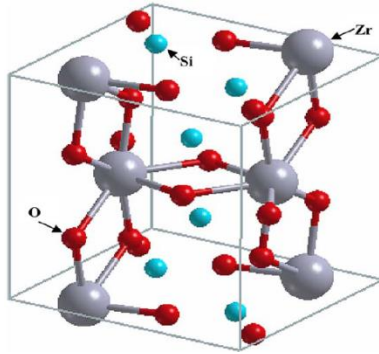
Gambar 2. 1 Struktur Ikatan ZrO₂ - SiO₂

Struktur unit zirkon merupakan ikatan pemakaian bersama pada setiap tepinya SiO₄ (tetrahedral) dan ZrO₈ (triangular dodecahedra) berada paralel terhadap sumbu-z. Kemudian terdapat pemakaian bersama pada sudut-sudut SiO₄ (tetrahedra) dan terdapat ikatan pemakaian bersama pada tepi dengan ZrO₈ (triangular dodecahedra) lainnya secara paralel terhadap sumbu-x dan sumbu-y. (Tu dkk., 2015).



Gambar 2. 2 Silika dan Zirkonia yang Berdifusi Membentuk Zirkon

Zirkon yang diharapkan, yaitu zirkon yang memiliki kandungan dengan fase murni, maka diberikan perlakuan panas dengan cara disinter pada temperatur tinggi, dan dilakukan *holding time*, agar membatasi terbentuknya matrik zirkon (Tu dkk., 2015).



Gambar 2. 3 Struktur Kristal dari ZrSiO₄

Pada temperatur rendah, ZrSiO₄ disebut sebagai zirkon, memiliki kisi Bravais *Body-centered* tetragonal dengan 12 atom pada setiap unit sel (Gambar 2.3). Grup ruang yang dimiliki oleh struktur kristal ini, yaitu I41/amd dan satu unit sel terdiri atas empat grup SiO₄⁴⁻ dan empat grup ZrO₈¹²⁻. Pada masing-masing empat grup memiliki kesamaan geometri dan orientasi yang berbeda. Pada grup SiO₄⁴⁻ terdistorsi tetrahedral memanjang sepanjang dua kali lipat sumbu-y paralel terhadap sumbu c-kristalografi dan simetri D_{2d} (Terki dkk., 2005).

Delapan atom oksigen terkoordinasi membentuk atom zirkonium yang memiliki geometri triangular dodekahedron. Keempat lainnya berdasarkan penyusunan yang terdistorsi tetrahedral memanjang sepanjang dua kalipat sumbu-y paralel terhadap sumbu c-

kristalografi dan dirotasi 90° . Secara keseluruhan bersimetri terhadap grup ZrO_8^{12-} ialah D_{2d} (Terki dkk., 2005).

2.2 Pembentukan Fasa Zirkon

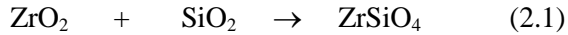
Karena sifat daya tahan, stabilitas, dan ketahanan terhadap *thermal shock*, zirkon sangat berpotensi dalam penggunaan berbagai aplikasi. Namun, sifat refraktori yang dimiliki oleh struktur zirkon dijelaskan dari pembentukan energi Gibbs ΔG_f yang diperlukan dalam perhitungan kesetimbangan fase yang melibatkan $ZrSiO_4$.

Energi Gibbs ΔG_f zirkon berasal dari oksida yang diturunkan dari kesetimbangan fase dan temperatur tinggi sebagai hasil pelelehan oksida pada kalorimeter.

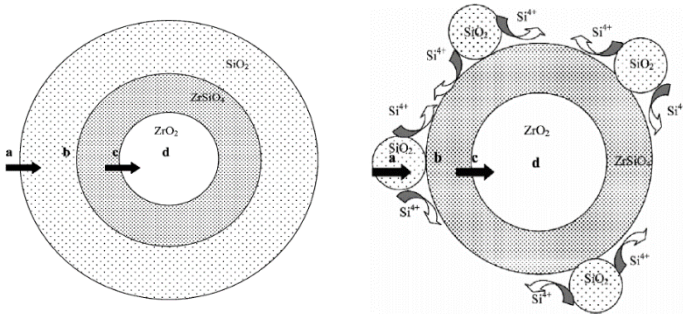
Tabel 2. 1 Ringkasan Energi Gibbs dari Berbagai Penelitian

ΔG_f (kJ/mol)	Metode	Refferensi
-18,44	High- <i>PT</i> phase equilibrium, 0,7-1,1 Gpa, 1073-1173 K	(Ferry dkk,2002)
-19,30	High- <i>PT</i> solubility, 1.2 Gpa, 1073 K	(Newton dan Manning, 2005)
-20,79	High- <i>T</i> redox equilibria, 10^5 Pa, 1515-1639 K	(Rosen dan Muan, 1965)
-23,57	High- <i>T</i> solution calorimetry, 10^5 Pa, 977 K	(Ellison dan Novrotsky, 1992)
-24,28	Monotropic reactions, 100 MPa, 1000 K	Schuling dkk., 1976)

Reaksi kinetik pembentukan zirkon dari proses oksidasi, yaitu,



Oleh karena energi pembentukan yang relatif kecil (Ellison dan Navrotsky, 1992), difusi kinetik yang lambat, dan energi aktivasi kinetik yang besar untuk melakukan reaksi kombinasi pada komponen oksida (ZrO_2 dan SiO_2), untuk mendapatkan sintesis zirkon murni dengan hasil yang tinggi sangatlah sulit. Hal ini menjadi perubahan besar terhadap Zr antara baddeleyit (ZrO_2) dan struktur zirkon, dan SiO_2 memiliki kelarutan padat yang sangat rendah terhadap ZrO_2 (Kanno, 1989).



Gambar 2. 4 Representasi Skematik Dua Dimensi Partikel $\text{ZrO}_2.\text{SiO}_2$

Model mekanisme pembentukan diterangkan dari evolusi morfologi pada partikel ZrSiO_4 seperti pada Gambar 2.4. Pada satu butir SiO_2 mengalami interkoneksi dengan ZrO_2 amorf yang mengalami pengendapan. Sisi butir lainnya secara simultan mengisi pori-pori SiO_2 . Sehingga efek yang diperoleh, yaitu mengalami agregasi hasil partikel komposit. Saat pengeringan dengan diberi perlakuan pemanasan pada temperatur $110\text{ }^\circ\text{C}$, maka didapatkan perbedaan densitas pada kedua oksida ($\rho_{\text{SiO}_2} = 2,3\text{ kg/m}^3$ dan $\rho_{\text{ZrO}_2} = 5,0\text{ kg/m}^3$), akibatnya mengalami

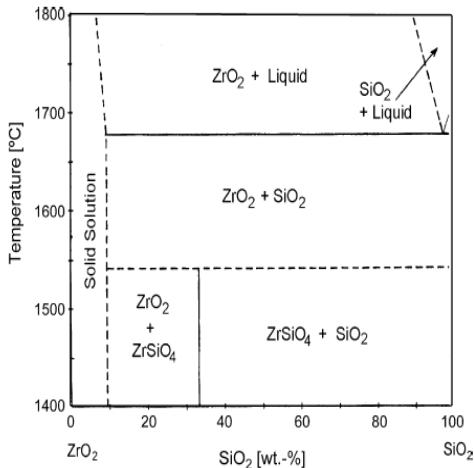
retakan dari agregasi kecil pada ZrO_2 sebagai pelapis pada setiap retakan, dan akibatnya dihasilkan disagregasi yang berlebih. Hal tersebut, dapat dijelaskan dengan seiring meningkatnya area permukaan. Peningkatan jumlah ZrO_2 dan mengalami pengeringan, dapat disebutkan mengalami efek yang akan menghasilkan disagregasi yang sejenis, sehingga membentuk agregasi SiO_2 yang dilapisi, dan butir ZrO_2 yang berukuran kecil akibat hasil pengendapan ZrO_2 (Navio dkk., 1997).

Zirkon murni diperoleh dari hasil pemberian perlakuan panas kalsinasi pada temperatur tinggi. Saat zirkon diberikan perlakuan panas pada temperatur rendah terdapat material ketidakmurnian yang terkandung dalam struktur material zirkon. Zirkon murni diperoleh dari sintesis serbuk zirkonia (ZrO_2) dan silika (SiO_2).

Dari hasil sintesis menggunakan bahan komersial tersebut diharapkan terbentuk zirkon melalui pencampuran ekimolar zirkonium klorid dan TEOS yang homogen dan dilanjutkan dengan pemanasan pada temperatur tinggi. Zirkon yang telah melewati proses pengendapan dan menjadi murni, yaitu zirkon yang saat diberi perlakuan panas pada temperatur 1278 °C dan 1556 °C dengan maksimum rentang kenaikan 1444 °C (Kaiser dkk., 2008). Pembentukan zirkon dapat terjadi secara normal pada temperatur 1700 °C berdasarkan diagram fasa $ZrSiO_4$. Dari diagram fasa tersebut dapat dianalisa bahwa dalam sintesis zirkon menggunakan temperatur tinggi.

Pembentukan zirkon dimulai dari zirkonia ZrO_2 dengan quartz, fase kristobalit, tridimit, atau silika amorf tidak menunjukkan perbedaan tertentu dibandingkan dengan modifikasi silika. Temperatur pembentukan sangat rendah diamati pada temperatur 1333 °C dimana sedikit lebih tinggi dibandingkan pembentukan dengan temperatur lebih rendah, misalnya 1278 °C. Oleh sebab itu, Curtis dan Sowman beranggapan penyusunan untuk reaksi *solid-state*

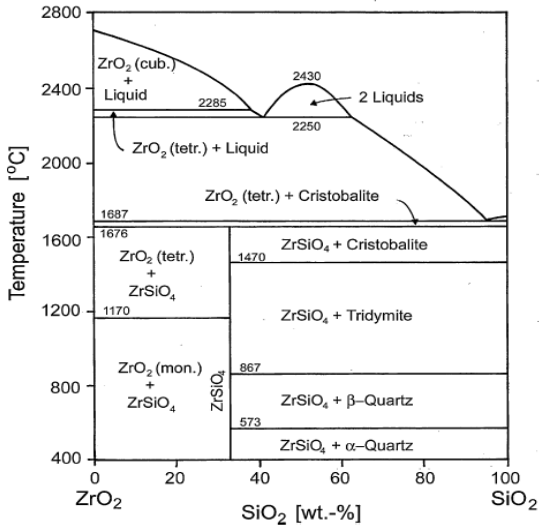
dan diagram fasa nya berdasarkan Gambar 2.5 (Kaiser dkk., 2008).



Gambar 2. 5 Diagram Fasa ZrO₂.SiO₂, Curtis dan Sowman

Kemudian Butterman dan Foster menjelaskan untuk kedua maksimum temperatur pembentukan zirkon yang bercampur dengan oksida. Dari diagram fase pada Gambar 2.5, Butterman dan Foster menganalisa bahwa minimum temperatur penguraian ditemukan pada 1676 ± 7 °C (Kaiser dkk.,2008).

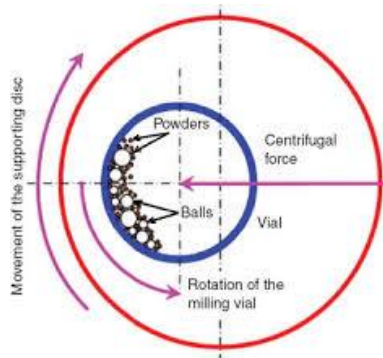
Dari diagram fasa setelah Butterman dan Foster kita dapat menganalisa jumlah massa ZrO₂ dan volume TEOS yang diperlukan dalam proses sintesis, yaitu dengan mengekimolarkan persen berat yang didapatkan pada masing-masing komposisi, yaitu 67,2% bersumber dari zirkonia dan 32,8% berasal dari silika (Pirkle dan Podmeyer, 1988).



Gambar 2. 6 Diagram Fasa ZrO₂.SiO₂, setelah Butterman dan Foster

2.3 Aktivasi Mekanik

Untuk mendapatkan serbuk nanokristal sampel diberi perlakuan metode *ball-mill*, dari perlakuan tersebut akan muncul sifat baru yang diinginkan. Namun penelitian pada sintesis nanokristal ZrSiO₄ dengan menggunakan *ball-mill* masih sangat sedikit (Pradhan dan Sinha, 2005). Aktivasi mekanik menggunakan *ball-mill* bertujuan untuk meningkatkan reaktivitas, sehingga saat diberi perlakuan panas kalsinasi pada temperatur rendah dapat muncul fase yang diinginkan. Kemunculan fase tersebut disebabkan meningkatnya kecepatan difusi dan homogenitas partikel menjadi lebih tinggi (Ahmadazeh dkk., 2015).

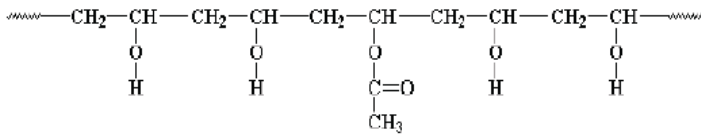


Gambar 2. 7 Mekanisme Kerja Planetary Ball Milling

Sintesis serbuk zirkon dengan pemberian perlakuan kalsinasi pada temperatur lebih dari 1500 °C didapatkan fase zirkon kurang dari 50 %, artinya zirkon yang terbentuk belum sempurna. Sampel serbuk zirkon yang telah dikalsinasi pada temperatur kemudian dianalisa dengan XRD akan muncul fase lebih dominan, yaitu fase zirkonia monoklinik ($m\text{-ZrO}_2$) dengan silika amorf telah berubah menjadi kristobalit (Ying dkk., 1994).

2.4 Polivinil Alkohol (PVA)

Polivinil alkohol merupakan material hasil hidrolisis dari polivinil asetat (PVAc). Polivinil alkohol memiliki sifat tidak berwarna, padatan termoplastik yang tidak larut pada sebagian besar organik dan minyak, melainkan larut dalam air bila jumlah dari gugus hidroksil dari polimer tersebut cukup tinggi. Sifat fisis dair PVA ditentukan oleh kondisi polimerisasi dari poli(vinil asetat), kondisi saat hidrolisis, proses pengeringan, dan proses penggilingan. Polivinil alkohol dalam kondisi ruangan berbentuk bubuk putih dengan titik lebur berkisar antara 220-267 °C. Rumus struktur polivinil alkohol dengan kopolimer vinil asetat pada Gambar 2.8 (El Discha dan Rahmania A., 2014).

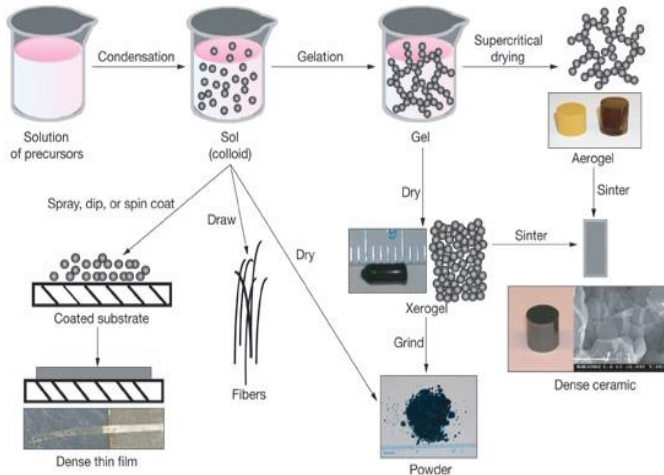


Gambar 2. 8 Rumus Struktur Poli(vinil Alkohol)

PVA dalam keramik berfungsi sebagai *binder*. PVA mempengaruhi pertumbuhan kristal dengan cara masuk (terserap) secara cepat ke sisi-sisi dan mempengaruhi pertumbuhan suatu bidang. Oleh karena itu, diperkirakan pertumbuhan kristalnya berbentuk isotropik dibandingkan pertumbuhan ke segala arah berlapis (Peko dkk., 2010).

2.5 Metode Sol-Gel

Terdapat berbagai metode untuk menghasilkan zirkon (ZrSiO_4), diantaranya metode reaksi solid, proses sol-gel, metode mikoremulsi, reaksi ko-presipitasi, dan metode hidrothermal temperatur rendah (Wang dkk., 2011). Walaupun zirkon ZrSiO_4 dapat disintesis dengan metode reaksi solid pada temperatur antara 1450-1500 °C dalam udara, ini sangat sulit didapatkan serbuk zirkon dengan kemurnian tinggi. Jika dibandingkan dengan metode konvensional, proses dengan menggunakan prekursor komersial merupakan metode yang telah terbentuk dalam pembentukan fase kristalin dan serbuk zirkon berukuran nano. Sehingga, metode sol-gel sangat baik dalam sintesis untuk menghasilkan serbuk zirkon.



Gambar 2. 9 Proses Sol-Gel

Fase gel dihasilkan dari hidrolisis dan kondensasi dari reaksi metal prekursor alkoksida, dan kemudian dirubah menjadi xerogel dengan cara pengeringan. Fase xerogel pada umumnya berbentuk amorf, mikropori, solid yang terhydrasi dan secara konvensional melalui pelelehan secara perlahan jika diberi perlakuan panas hingga mencapai 1000 °C. Struktur yang kuat pada zirkonia-silika xerogels tergantung pada komposisi, metode preparasi dan pemberian perlakuan panas (Mountjoy dkk., 2000).

Metode Sol-gel dapat juga digunakan dengan mengkombinasikan penambahan pada bahan prekursor dengan larutan aquades atau media larutan organik, garam maupun alkoksida. Kelebihan penggunaan metode sol-gel, yaitu merupakan metode yang digunakan sederhana dan cepat karena reaksi pengikatan seiring dengan terbentuknya padatan. Selain itu memiliki tingkat kemurnian yang tinggi, dan dapat digunakan pada temperatur yang digunakan

rendah, fase pemisahan yang cepat, kehomogenitasannya lebih baik dibandingkan metode yang lain, dan porositas yang dihasilkan lebih baik (Wogo dkk., 2016).

Tabel 2. 2 Perbandingan Hasil Sintesis Serbuk Zirkon dengan Metode Sol-Gel pada berbagai Penelitian

Referensi	Prekursor	Kondisi	Fasa yang Terbentuk	Ukuran Partikel
(Wang et al., 1997)	ZrOCl ₂ dan prekursor silika	120 °C 24jam, kalsinasi 700 °C 2jam	ZrSiO ₄	52.6 nm
(Stachs et al., 1997)	TEOS & Zirconium tetra-n-propoxide	330 °K, kalsinasi 400-1100 °K 2jam	t-ZrO ₂ pada 800 °K	0.8-0.9 nm
(Shoyama and N. Matsumoto, 1998)	ZrOCl ₂ .8H ₂ O/ Zr(OC ₃ H ₇) ₄ & TEOS, Lithium LiCl	50 °C 1jam, kalsinasi 700-1000 °C 3jam	ZrSiO ₄ pada 1000 °C	-
(Du et al., 1999)	TEOS & ZrOCl ₂ .8H ₂ O + 2,5 mol% Y ₂ O ₃	40 °C pH=9 kalsinasi 1100-1500 4jam	ZrSiO ₄ pada 1500 °C ZrSiO ₄ & t-ZrO ₂ pada 1300 °C	-
(Veytizou et al., 2000)	TEOS & ZrO(NO ₃) ₂ .xH ₂ O	100 °C 24 jam kalsinasi 1300 °C 3jam	ZrSiO ₄	50 nm
(Del Monte et al., 2000)	TEOS 98 % & Zirconium-n-propoxide(70%)	60 °C 24 jam, kalsinasi 600-1000 °C 6jam	m-ZrSiO ₄ pada 1000 °C	9.7-30 nm

Metode sol-gel dikenal sebagai metode pembentukan keramik maupun glas pada suhu rendah, yang mana bisa diterapkan dalam pembentukan keramik zirkon, dimana masih terdapat mineral lain yang tidak bermanfaat dalam pembentukan produk dengan kemurnian tinggi (Shoyama dan N. Matsumoto, 1998).

BAB III

METODOLOGI PENELITIAN

3.1 Prosedur Kerja

3.1.1 Sintesis

Tujuan penelitian ini untuk menghasilkan teknik sintesis serbuk zirkon murni dibuat dari bahan komersial dengan metode sol-gel yang mampu terbentuk pada temperatur lebih rendah dibandingkan dengan metode pembentukan zirkon lainnya. Serbuk zirkon pada penelitian ini akan dihasilkan dari penggunaan bahan komersial, yaitu zirkonium klorid ($ZrCl_4$) (Merck KGaA, $M= 233,04$ g/mol) sebagai sumber zirconium (Zr) dan TEOS (tetraethylorthosilicate, $Si(OC_2H_5)_4$) (Sigma Aldrich, Co, reagent grade 98 %, $d= 0,933$ g/ml, $MW=208,33$ g/mol) sebagai sumber silikon (Si). Dari hasil sintesis menggunakan bahan komersial tersebut diharapkan akan terbentuk zirkon melalui pencampuran ekimolar zirkonium klorid dan TEOS yang homogen dan dilanjutkan dengan pemanasan pada temperatur tinggi. Dalam penelitian ini akan dilakukan variasi temperatur pemanasan terhadap pembentukan serbuk zirkon murni guna mempelajari karakterisasi sifat fisisnya seperti identifikasi fasa dan mikrostruktur serbuk zirkon.

Proses awal penelitian akan dilakukan dengan cara penyiapan bahan komersial berupa serbuk zirkonium klorid dan larutan TEOS dengan jumlah perhitungan stokiometri. Serbuk zirkonium klorid bermassa 9,32 gram di larutkan dalam 200 ml aquades, kemudian direaksikan dengan larutan TEOS sebanyak 10 ml yang telah dicampurkan dengan etanol berkadar 98% sebanyak 10 ml. Untuk mendapatkan kehomogenan molekul, pada prekursor dilakukan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* di

atas *hotplate stirrer ciramec* dalam temperatur 100 °C selama 24 jam. Kedua prekursor yang telah direaksikan tersebut secara homogen bersifat asam karena mengandung ion Cl^- dari hasil larutan zirkonium klorid. Ketika akan diberi larutan ammonia 10 % dengan cara dititrasi hingga mencapai $\text{pH}=11$ pada temperatur ruang dengan terus dilakukan pengadukan dengan *magnetic stirrer* maka tersuspensi membentuk gel yang homogen. Gel yang tersuspensi secara homogen dilakukan pencucian sebanyak 15 kali atau hingga $\text{pH}=7$ bertujuan untuk membuang mineral-mineral pengotor hasil dari pencampuran bahan komersial yang tidak dapat menguap pada saat pengadukan. Kemudian akan dilakukan penyaringan bertujuan untuk mendapatkan gel dengan konsentrasi yang tinggi. Gel yang telah mengendap, selanjutnya akan dilakukan proses pengeringan menghasilkan serbuk zirkon amorf. Sampel yang telah berbentuk serbuk zirkon amorf tersebut akan dilakukan pengujian kandungan unsur menggunakan XRF. Dengan pengujian XRF dapat diketahui persentase sampel antara Zr dengan Si yang ekimolar. Serbuk zirkon (ZrSiO_4) yang telah dimortar dilakukan metode aktivasi dengan *Planetary ball-milling* dengan harapan untuk memunculkan fase yang diinginkan dan menghomogenkan ukuran butir partikel. Metode aktivasi ini disebut metode *wet-milled*, yaitu menggunakan alkohol 98% yang dicampurkan dengan serbuk prekursor yang telah diberi PVA sebesar 3 wt.%.

Setelah dilakukan *wet-milled*, serbuk diberikan perlakuan panas dengan cara dikalsinasi dengan variasi temperatur 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1200 °C, 1300 °C, dengan waktu penahanan 10 jam, dengan tujuan kalsinasi untuk membentuk oksida pada ZrSiO_4 , menumbuhkan butir kristal dari sampel yang masih dalam “fase amorf”. Temperatur kalsinasi dari sampel akan diketahui dengan cara melakukan karakterisasi sampel menggunakan DTA/TGA. Sampel yang telah dikalsinasi dipindahkan dari

krusibel untuk di karakterisasi sampel dengan bantuan sinar-X, yaitu karakterisasi fasa dan ukuran kristal menggunakan *X-Ray Diffraction (XRD)* dan mikrografi beserta ukuran partikelnya menggunakan *Scanning Electron Microscope (SEM)*.

3.1.2 Karakterisasi Serbuk Zirkon ($ZrSiO_4$)

Karakterisasi Kandungan Unsur

Identifikasi kandungan unsur pada sampel yang masih dalam keadaan terdapat pengotor dilakukan dengan menggunakan alat *X-Ray Fluorescence (XRF)* ARL QUANT'X EDXRF *Spectrometer* di Laboratorium Jurusan Fisika Universitas Hasanuddin Makassar. Alat XRF ini tidak menggunakan *water chiller* dan dapat menganalisa unsur berat.

Pada dasarnya analisa dengan XRF merupakan analisis secara kualitatif, yaitu menganalisa unsur dalam mineral atau bahan. Prinsip analisis XRF berdasarkan prinsip efek fotolistrik. Terjadi karena elektron dalam atom target pada sampel terkena sinar berenergi tinggi. Setiap atom terdapat elektron yang memiliki energi aktivasi berbeda. Saat elektron pada kulit K terpental keluar akibat diberi radiasi sinar-X yang datang maka terjadi kekosongan/vakansi elektron, maka elektron dari kulit L atau M berpindah menuju kekosongan tersebut disertai dengan emisi sinar-X, kemudian emisi tersebut ditangkap oleh detektor pada alat XRF dan dapat diketahui kandungan unsur pada sampel yang dianalisa.

Karakterisasi Struktur

Identifikasi fasa serbuk zirkon ($ZrSiO_4$) hasil sintesis dilakukan menggunakan pengujian difraksi sinar-X dengan menggunakan alat XRD Philips Binary X'Pert PRO, PANalytical di Laboratorium Teknik Material Metalurgi ITS Surabaya. Pengukuran ini menggunakan

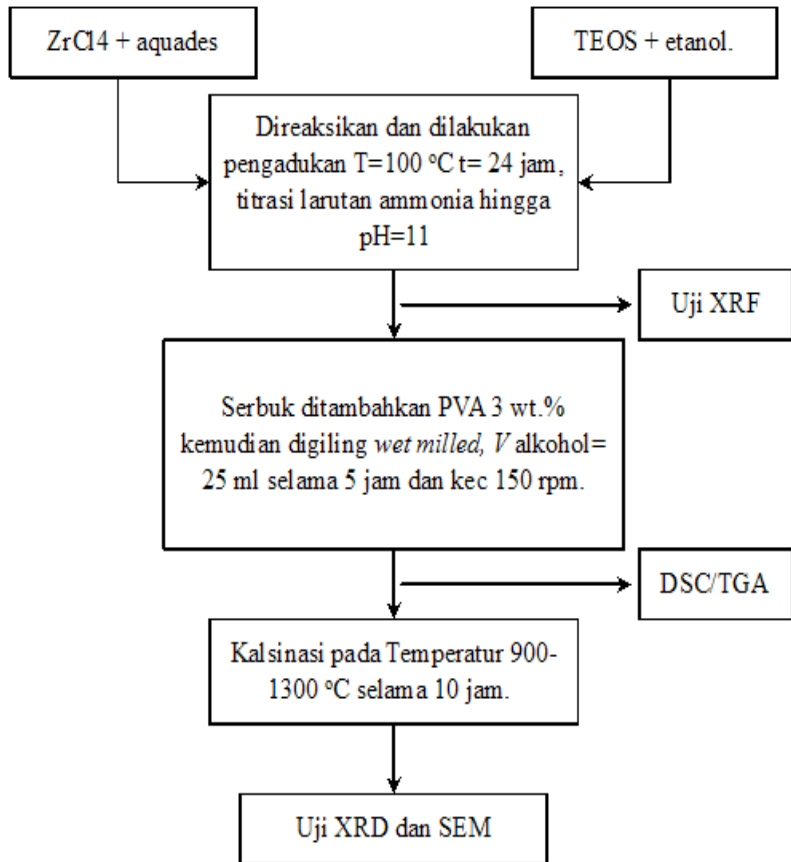
anoda target Cu-K α ($\lambda=1,54056 \text{ \AA}$) dilakukan pada sudut 15-65 ° dengan step size 0.017 ° dan tegangan 40 kV serta arus 30 mA.

Karakterisasi kandungan fasa diawali dengan analisa secara kualitatif dari pola yang dihasilkan pada XRD yang bekerja dengan memanfaatkan Hukum Bragg. Pola pada XRD dihasilkan dari sinar-X yang bertumbukan antara elektron dengan kecepatan tinggi dengan logam target. Berkas sinar-X yang bertumbukan dan saling menguatkan tersebut disebut sebagai berkas difraksi. Pola yang dihasilkan dengan intensitas 2θ dan list hkl tersebut dicocokkan menggunakan program *Match!*2. Kemudian di analisis menggunakan *software Rietica* dengan metode *Rietveld* untuk mendapatkan data kuantitatif kandungan fasa yang terbentuk dari sampel. Untuk membuat model data terhitung pada *Rietica* menggunakan CIF file yang diperoleh dari *Chrystallography Open Database*. Kemudian dilakukan pencocokan antara model terhitung dengan pola difraksi dari sampel dengan dilakukan perubahan parameter (*refinement*) dengan metode *Rietveld*. Analisa secara kuantitatif selain menggunakan *Rietica* dapat menggunakan software MAUD. Pada aplikasi *MAUD (Material Analysis Using Diffraction)* guna mendapatkan ukuran kristal dan regangan mikro yang terkandung pada sampel ditinjau dari kelebaran puncak hasil XRD.

Karakterisasi Mikrostruktur

Serbuk yang telah melewati proses pemurnian dan diketahui fasa tunggal yang terbentuk dilakukan pengujian identifikasi morfologi mikrostruktur zirkon menggunakan *Scanning Electron Microscope (SEM)*. Pengambilan gambar mikro beserta ukuran butir sampel dengan SEM dilakukan di LPPM Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.

3.2 Diagram Alir Penelitian



Gambar 3. 1 Diagram Alir Penelitian

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB IV

Hasil dan Pembahasan

4.1 Kandungan Unsur

Persentase kandungan unsur pada serbuk prekursor sebelum kalsinasi dari hasil sintesis menggunakan metode sol-gel dengan bahan dasar komersial zirkonium klorid ($ZrCl_4$) dan tetra etil orto silikat (TEOS) ditunjukkan pada Tabel 4.1.

Tabel 4. 1 Komposisi Unsur pada Sampel Serbuk Zirkon ZS sebelum Kalsinasi

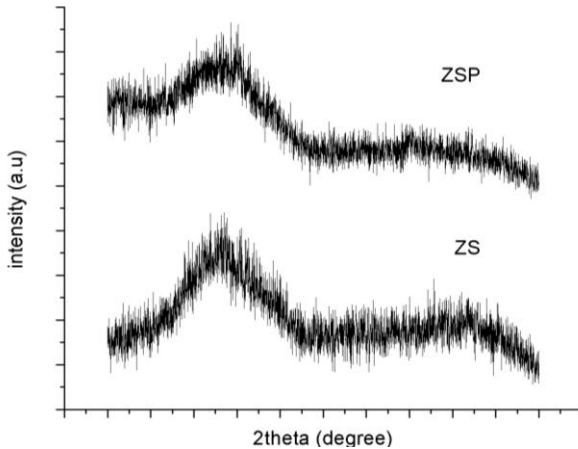
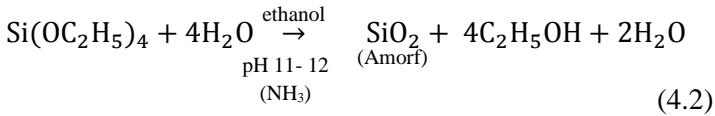
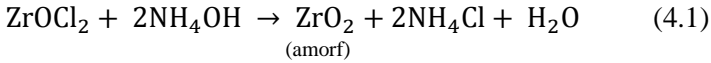
Unsur	Mol%
Zr	0,58
Si	0,41
Y	0,01
U	0,001
Sr	0,001
Ag	0,0001
Cd	0,00007

Hasil ini mengkonfirmasi bahwa serbuk yang telah disintesis mengandung unsur Zr dan Si sebagai unsur pembentuk zirkon dengan perbandingan yang ekimolar (50:50 mol%). Analisis lanjut pada serbuk ini adalah mengetahui kandungan fasa yang terbentuk.

4.2 Analisis Fasa

Serbuk yang telah disintesis dengan metode sol-gel (sampel ZS) selanjutnya diberi penambahan PVA sebanyak 3 wt.% dan perlakuan aktivasi mekanik (penggilingan selama 5 jam) yang selanjutnya disebut sampel ZSP. Hasil pengujian difraksi sinar-X kedua sampel tersebut ditunjukkan pada Gambar 4.1. Pola difraksi menunjukkan

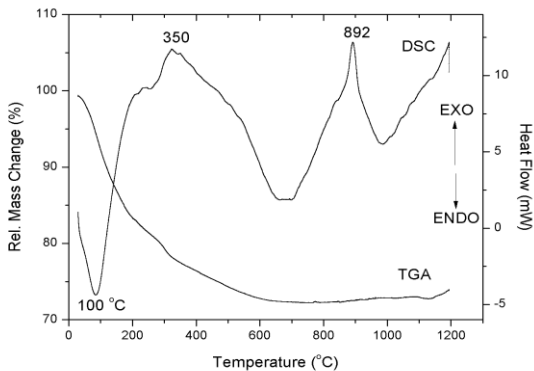
bahwa kedua sampel memiliki struktur amorf. Proses terbentuknya “fasa amorf” tersebut mengikuti reaksi Persamaan-persamaan (4.1) dan (4.2),



Gambar 4.1 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) Sampel ZS (serbuk setelah sintesis dengan metode sol-gel) dan ZSP (serbuk yang telah setelah penambahan PVA dan penggilingan)

Berdasarkan reaksi di atas, diperoleh hasil sintesis berupa serbuk zirkonia amorf dan silika amorf. Pada penelitian ini, serbuk amorf sebelum kalsinasi diberi

perlakuan aktivasi mekanik dengan penggilingan selama 5 jam dan penambahan katalis berupa PVA sebesar 3 wt.%. Terbentuknya kristalin dari serbuk amorf dihasilkan jika serbuk dikalsinasi pada temperatur tertentu. Kalsinasi bertujuan untuk memberikan energi kalor untuk membantu mereaksikan senyawa sehingga membentuk senyawa baru yang diinginkan. Selama proses kalsinasi terjadi perubahan susunan atom pada senyawa yang direaksikan sehingga dapat memicu terjadinya perubahan struktur kristal dari senyawa tersebut, (Fu Yui, 2010). Selama proses kalsinasi terdapat reaksi kinetik pembentukan zirkon dari proses oksidasi, yaitu seperti pada persamaan (2.1). Pada penelitian ini serbuk amorf dikalsinasi pada temperatur 900-1300 °C. Pemilihan temperatur ini didasarkan pada analisis data DSC/TGA yang ditunjukkan Gambar 4.2.

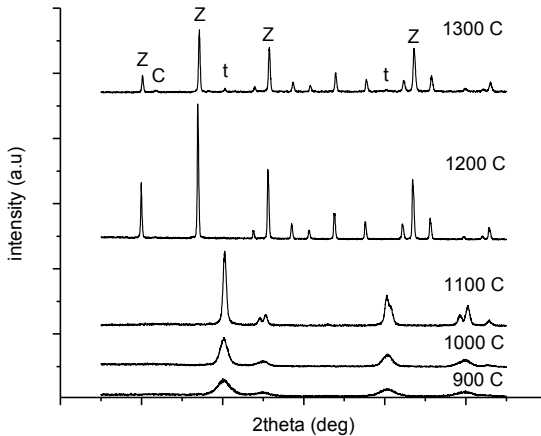


Gambar 4. 2 Analisis DSC/TGA Sampel Serbuk ZSP

Dari hasil DSC/TGA, dapat dipelajari evolusi termal pada partikel awal. Dalam rentang temperatur 29 °C dan 600 °C, TGA menunjukkan berat yang hilang sebesar 27%, yang mana terkait dengan pelepasan air, alkohol, ammonia yang teradsorpsi, dan terdekomposisi dengan senyawa organik lainnya. Puncak endotermis berada pada temperatur

100 °C berkaitan dengan pelepasan air dan alkohol yang teradsorpsi. Puncak eksotermis berada pada temperatur 350 °C berkaitan dengan eliminasi surfaktan dan asetat. Terdapat puncak eksotermis tambahan adalah pada temperatur 892 °C, sesuai dengan data pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa terbentuk kristal kubik atau zirkonia tetragonal (Tartaj dan De Jonghe, 2000).

Hasil analisis pola difraksi sinar-X pada Gambar 4.3 menunjukkan bahwa fasa yang terbentuk pada sampel-sampel yang dikalsinasi pada temperatur 900-1300 °C telah mengalami kristalisasi.



Gambar 4. 3 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) Serbuk Zirkon ZSP dengan temperatur Kalsinasi 900-1300 °C dengan Waktu Penahanan 10 jam, ket: Z= zirkon, t=zirkonia tetragonal, C= kristobalit

Temperatur kalsinasi merupakan parameter penting, karena terdapat proses pembentukan energi Gibbs ΔG_f berasal dari oksida yang diturunkan dari kesetimbangan

fase dan temperatur tinggi sebagai hasil pelelehan oksida pada kalorimetri (Ellison dan Navrotsky, 1992).

Tabel 4. 2 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) terhadap Kandungan Fasa pada Serbuk Zirkon ZSP setelah Kalsinasi

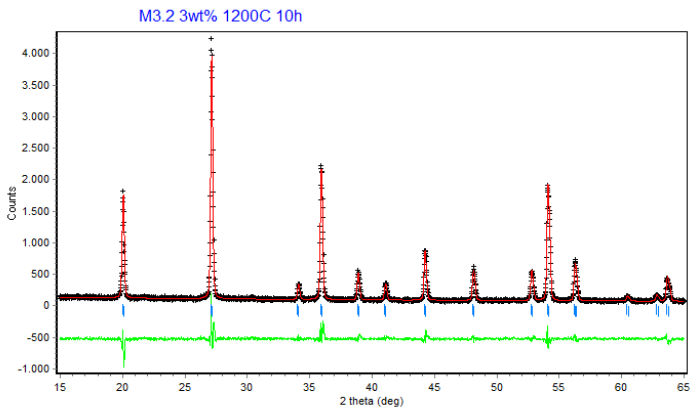
Sampel	Fasa			
	Zirkon	t-Zirkonia	m-Zirkonia	Kristobalit
900	-	v	-	-
1000	-	v	-	-
1100	-	v	-	-
1200	v	-	-	-
1300	v	v	-	v

Hasil analisis kualitatif data XRD seperti ditunjukkan pada Tabel 4.2. Dengan temperatur kalsinasi 900-1100 °C terbentuk fasa zirkonia tetragonal [No. PDF 079-1767] dan pada temperatur kalsinasi 1200 °C fasa tunggal zirkon [No. PDF 072-0402] teridentifikasi. Sedangkan terdapat tiga fasa pada sampel yang dikalsinasi pada temperatur 1300 °C, yaitu fasa zirkon, tetragonal zirkonia, dan kristobalit rendah [No. PDF 076-0940].

Dari data DSC/TGA yang ditunjukkan Gambar 4.2, pada temperatur kalsinasi 900-1100 °C telah terbentuk fasa, yaitu zirkonia dengan struktur tetragonal dan SiO₂ yang masih amorf. Pada temperatur 892 °C fasa zirkonia tetragonal telah mengkristal, seperti pada hasil DSC/TGA (Gambar 4.2). Proses kristalisasi pada zirkonia amorf menjadi fasa zirkonia tetragonal pada temperatur di atas 800 °C (Veytizou dkk., 2001), atau lebih tepatnya zirkonia terbentuk pada temperatur 900 °C hanya terdapat fasa zirkonia tetragonal (Tartaj dan De Jonghe, 2000). Sedangkan, pembentukan fasa kristobalit rendah (*low-cristobalite*) dari silika amorf terjadi pada temperatur pembentukan 1000-1200 °C (Latif, dkk., 2014). Namun,

pada temperatur 1000 °C dan 1100 °C masih terdapat SiO₂ yang masih amorf. Hal itu terjadi, selama proses kalsinasi energi panas yang diberikan tidak dapat melebihi energi Gibbs pembentukan SiO₂. Sehingga dibutuhkan temperatur yang lebih tinggi daripada pembentukan fasa zirkonia dan fasa kristobalit rendah, yaitu pembentukan zirkon dengan komposisi ekimolar ZrO₂ dan SiO₂ berada pada temperatur 1300-1500 °C (Du dkk., 1999).

Dari hasil pola difraksi sinar-X seperti pada Gambar 4.3, dapat diketahui pembentukan zirkon fasa tunggal terjadi pada temperatur kalsinasi 1200 °C. Pembentukan fasa zirkon tunggal tersebut dikonfirmasi dengan analisis menggunakan *software Rietica*. Contoh pola penghalusan pada sampel dapat dilihat pada Gambar 4.4. Warna hitam menunjukkan data hasil pola difraksi sinar-X, warna merah adalah model yang dibuat dari data CIF yang diperoleh dari *Chrysallography Open Database*, dan warna hijau menunjukkan selisih antara model dengan data hasil pola difraksi sinar-X.



Gambar 4. 4 Contoh Pola Penghalusan pada Sampel Serbuk ZSP dengan Temperatur Kalsinasi 1200 °C dengan Waktu Tahan 10 jam.

Kecocokan pengolahan *software Rietica* yang dapat diterima secara umum nilai *GoF* (*Goodnees-of-fit*) kurang dari 4%, sedangkan parameter kecocokan yang lain seperti *R-profile* (R_p), *R-weighted profile* (R_{wp}), *R-expected* (R_{exp}) kurang dari 20% dan nilai *R-Bragg* kurang dari 10%. Hasil nilai kecocokan pengolahan *software Rietica* serbuk zirkon setelah kalsinasi pada temperatur 1200 °C terdapat pada Tabel 4.3.

Tabel 4. 3 Hasil FoM Berdasarkan Analisis Software Rietica

Sampel	FoM			
	GoF	R _p	R _{wp}	R _{exp}
900	2,02	9,12	11,66	8,20
1000	1,85	8,97	11,46	8,42
1100	2,24	8,55	10,57	7,06
1200	2,18	8,71	11,34	7,67
1300	3,12	11,00	14,04	7,95

Antara plot grafik pada pola penghalusan dengan hasil FoM (*Figure-of-Merit*) pada analisis *software Rietica* dicocokkan untuk menghasilkan parameter global berupa komposisi fasa (mol%) dan parameter kisi serbuk-serbuk setelah kalsinasi dapat dilihat pada Tabel 4.4.

Tabel 4. 4 Luaran Rietica Serbuk ZSP setelah Kalsinasi 900-1300 °C dengan Waktu Tahan selama 10 jam.

Sampel	Fasa	Komposisi (mol%)	Parameter Kisi	
			a=b	c
900	t-Zirkonia	100(0)	3,5744(10)	5,1858(20)
1000	t-Zirkonia	100(0)	3,5723(7)	5,1260(16)
1100	t-Zirkonia	100(0)	3,5567(4)	5,1314(7)
1200	Zirkon	100(0)	6,5113(2)	5,9001(2)
1300	Zirkon	93,0(16)	6,5121(4)	5,9001(4)
	t-Zirkonia	3,0(2)	3,5614(20)	5,1315(41)
	Kristobalit	4,0(4)	4,9419(62)	7,1461(19)

Dari hasil analisis menggunakan *software Rietica* (Tabel 4.4), dipastikan pada temperatur kalsinasi 1200 °C telah berhasil terbentuk zirkon fasa tunggal. Terbentuknya zirkon fasa tunggal dengan temperatur kalsinasi 1200 °C dikarenakan energi Gibbs pembentukan reaksi zirkonia tetragonal dengan SiO₂ amorf telah terpenuhi, sehingga terdapat energi yang cukup tinggi untuk membentuk kristal zirkon. Terdapat reaksi kinetik pembentukan zirkon dari proses oksidasi, yaitu persamaan (2.1). Selain itu, dalam penelitian ini serbuk hasil sintesis diberi aktivasi mekanik dengan penggilingan menggunakan *ball mill*, kemudian serbuk diberi penambahan bahan aditif berupa PVA yang berfungsi sebagai katalis.

Efek mekanik dari penggilingan, yaitu menghasilkan reaktan dengan energi permukaan yang tinggi (*high surface energy*). Selama proses aktivasi mekanik berlangsung, sampel mengalami deformasi plastis sehingga mempermudah adanya mobilitas atomik. Waktu penggilingan mempengaruhi terhadap tumbukan yang terjadi pada sampel mengakibatkan pengurangan agregat dan juga ukuran butir sehingga terjadi kehomogenan campuran. Serbuk yang telah mengalami penggilingan akan terhomogenisasi. Homogenisasi dari pencampuran yang baik akan memudahkan bereaksinya senyawa zirkonia amorf dan silika amorf. Dengan mereduksinya ukuran butir yang semakin kecil akan menjadikan luas kontak permukaan antar butir senyawa zirkonia dengan silika akan semakin luas menyebabkan semakin banyak partikel yang bereaksi (Emadi dkk., 2015). Dengan meningkatnya aktivasi selama penggilingan, sehingga saat diberi energi dengan dikalsinasi pada temperatur 1200 °C selama 10 jam memudahkan terbentuknya fasa zirkon. Terbentuknya fasa tersebut disebabkan seiring dengan meningkatnya kecepatan difusi dan homogenitas partikel yang lebih tinggi (Ahmadazeh dkk., 2015).

Pemberian PVA 3wt.% sebagai katalis sangat mempengaruhi pertumbuhan kristal dengan cara masuk (terserap) secara cepat ke sisi-sisi dan mempengaruhi pertumbuhan suatu bidang (Peko dkk., 2010). PVA dalam suhu ruang mampu melebur pada temperatur 220-267 °C (El Discha dan Rahmania A., 2014) sehingga saat dikalsinasi pada temperatur 1200 °C, PVA meleleh dan mudah menyisip untuk mengikat atom Zr, Si, dan O. Karena salah satu kegunaan PVA adalah sebagai bahan adesif (perekat) yang memiliki ketahanan terhadap minyak dan pelumas. Hal tersebut, berkemungkinan mempengaruhi terbentuknya fasa yang diinginkan lebih cepat saat diberi energi saat proses kalsinasi. Penelitian peran PVA terhadap sintesis serbuk zirkon murni perlu dikaji lebih lanjut.

Dari penjelasan tersebut, penelitian ini menghasilkan serbuk zirkon murni yang terbentuk pada temperatur kalsinasi 1200 °C dengan waktu tahan 10 jam, dan kenaikan 5 °C/menit. Temperatur pembentukan tersebut lebih rendah dari penelitian terdahulu.

Dengan bahan dan metode yang sama, oleh Itoh (1992) mencampurkan bahan komersial kemudian memanaskan pada temperatur 500-1300 °C, menghasilkan fasa zirkon dan zirkonia tetragonal pada temperatur 1300 °C. Penelitian lain mendapatkan fasa zirkon tidak murni pada temperatur kalsinasi 1300 °C, kemudian dikalsinasi dengan temperatur yang lebih tinggi, yaitu pada temperatur 1500 °C terbentuk zirkon fasa tunggal (Du, dkk., 1999), penelitian lebih lanjut oleh Alarcón (2000) terbentuk zirkon kristalin adalah pada temperatur 1400 °C.

Dengan demikian dapat disimpulkan bahwa sintesis zirkon menggunakan bahan komersial $ZrCl_4$ dengan TEOS yang diberi aktivasi mekanik dengan penggilingan serta ditambahkan PVA sebagai katalisator berhasil membentuk zirkon fasa tunggal dengan temperatur kalsinasi yang lebih rendah.

Dengan diperolehnya keberhasilan membentuk zirkon pada temperatur kalsinasi 1200 °C, maka dimungkinkan zirkon terdekomposisi pada temperatur yang lebih rendah dari 1700 °C berdasarkan diagram fasa pembentukan zirkon (Du dkk., 1999). Sehingga, dengan kenaikan temperatur zirkon yang awalnya berupa fasa tunggal pada temperatur 1200 °C mengalami dekomposisi membentuk senyawa zirkonia dan silika pada kalsinasi temperatur 1300 °C seperti Gambar 4.3. Fase zirkon yang telah terdekomposisi, membentuk senyawa zirkonia dengan struktur kristal tetragonal dan membentuk senyawa silika dengan struktur kristal kristobalit. Pembentukan fasa-fasa saat terdekomposisi dikonfirmasi melalui hasil analisis Rietveld data difraksi sinar-X seperti pada Tabel 4.4.

Reaksi dekomposisi merupakan reaksi kimia pada senyawa tunggal memecah menjadi dua senyawa atau lebih pada kondisi tertentu. Dekomposisi yang terjadi serbuk zirkon ini merupakan akibat penguraian termal efek dari temperatur kalsinasi tinggi dengan menggunakan busur api plasma (Abdelkader dkk., 2008). Peneliti lain mengamati pengaruh temperatur kalsinasi terhadap zirkon yang mengalami dekomposisi jika dicampurkan dengan campuran alkali (Abdelkader dkk., 2008). Jumlah zirkon yang terdekomposisi menurut (Abdelkader dkk., 2008).

$$= \frac{\text{zircon decomposition (\%)}}{\text{original weight of zircon-unreacted zircon}} \times 100$$

$$\text{original weight of zircon}$$

(4.3)

Dalam penelitian ini, jumlah serbuk zirkon murni yang telah terdekomposisi, yaitu berjumlah 95,96%.

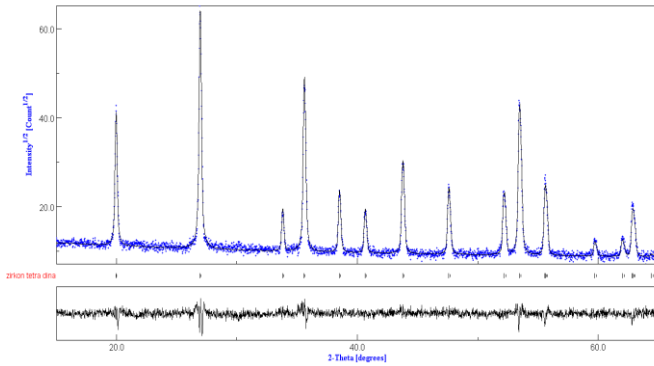
Selain temperatur, waktu tahan (*holding time*) dan kenaikan *rate* dapat berpengaruh pada pembentukan ukuran butir kristal (*grain growth*).

Berdasarkan analisis kualitatif, dapat diamati bahwa lebar puncak fasa zirkonia tetragonal menurun seiring

bertambahnya temperatur kalsinasi (900-1100 °C). Hal ini mengindikasikan bahwa ukuran kristal zirkonia tetragonal mengalami peningkatan seiring bertambahnya temperatur kalsinasi dan dikonfirmasi dengan hasil analisis *software MAUD* pada Tabel 4.4. seperti yang telah dibahas pada paragraf sebelumnya, bahwa temperatur merupakan parameter penting kalsinasi, sangat berpengaruh terhadap ukuran kristal, seperti pada penelitian (Del Monte dkk., 2000) bahwa semakin meningkatnya temperatur kalsinasi maka ukuran kristal semakin besar.

Untuk mendapatkan ukuran kristal fasa-fasa pada sampel yang dikalsinasi dengan variasi temperatur 900-1300 °C, pola difraksi dianalisis menggunakan *software MAUD*. Parameter yang diubah pada penghalusan dengan *software MAUD* adalah background 0, 1, 2, 3, dan 4, selain itu panjang parameter sel (*cell-length*) pada masing-masing fasa, *phase scale factor*, *isotropic: crystal-size* dan *microstrain* masing-masing fasa, serta *asymmetry*. Kecocokan pengolahan *software MAUD* yang dapat diterima secara umum nilai *Sig* kurang dari 2% dan nilai R_w kurang dari 20%.

Contoh pola penghalusan dengan *MAUD* ditunjukkan pada Gambar 4.5. Dari pola penghalusan *MAUD* terdapat plot-plot grafik berwarna hitam dan biru. Warna hitam menunjukkan model yang diperoleh dari data CIF, dan warna biru menunjukkan data pola difraksi sinar-X serbuk zirkon.



Gambar 4. 5 Contoh Pola Penghalusan dengan Software MAUD pada Sampel Serbuk ZSP dengan Temperatur kalsinasi 1200 °C

Antara plot grafik pada pola penghalusan dengan hasil output pada analisis *software MAUD* dicocokkan untuk menghasilkan parameter berupa ukuran kristal dan regangan seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.5.

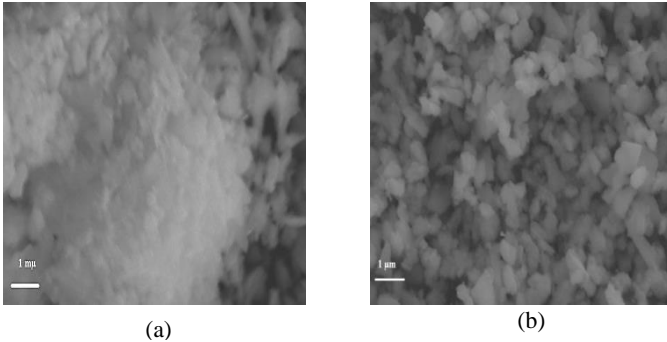
Tabel 4. 4 Luaran MAUD Serbuk ZSP setelah Kalsinasi 900-1300 °C dengan Penahanan selama 10 jam

Sampel	Fase	Ukuran Kristal (nm)	Regangan ($\times 10^{-4}$)
900	t-Zirkonia	4(0)	0,0(0)
1000	t-Zirkonia	7(0)	0,0(37)
1100	t-Zirkonia	18(2)	0,0(19)
1200	Zirkon	170(0)	8,7(3)
	Zirkon	80(23)	9,3(12)
1300	t-Zirkonia	91(212)	9,2(0)
	Kristobalit	33(10)	9,5(0)

Pada temperatur 1200 °C, kristal zirkonia tetragonal dengan kristobalit belum berdifusi secara sempurna, memungkinkan untuk dihasilkan kristal yang berukuran subnano-metrik, yaitu berukuran 170 nm. Perlu penelitian lebih lanjut terhadap serbuk zirkon murni yang berukuran orde nanometer.

4.3 Mikrostruktur

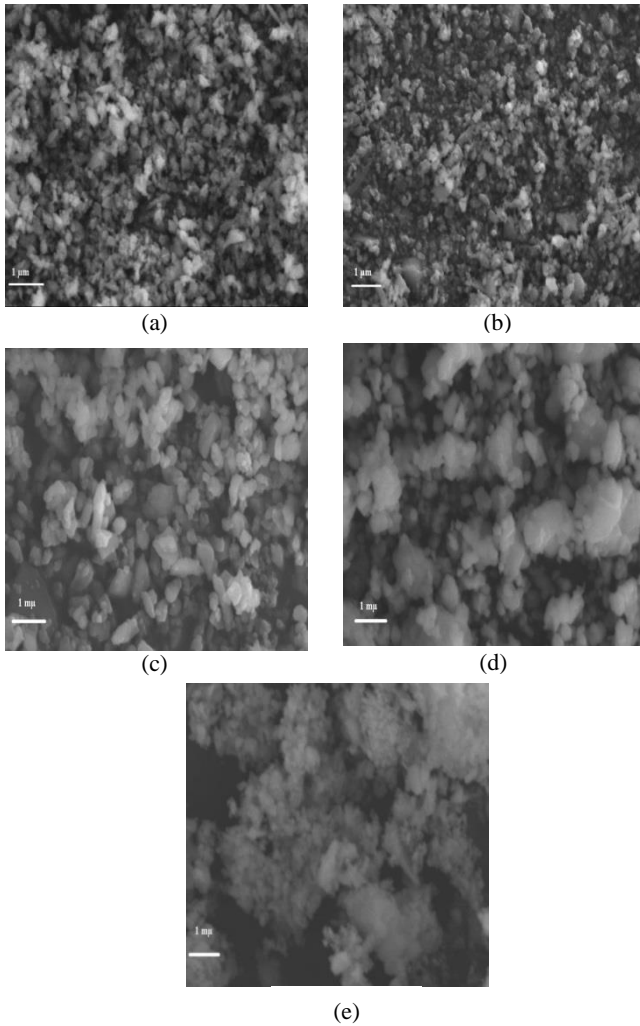
Analisa mikrografi pada permukaan serbuk ZSP diambil dalam bentuk citra SEM berupa morfologi dan ukuran butir. Serbuk zirkon amorf yang diberi PVA 3 wt.% kemudian digiling selama 5 jam akan menghasilkan citra SEM berbeda dari serbuk zirkon amorf murni, seperti ditunjukkan pada Gambar 4.6. Pada serbuk zirkon murni yang sebelum digiling (serbuk ZS) partikel memiliki bentuk yang tidak beraturan dengan batas butir yang masih belum terlihat. Dibandingkan dengan serbuk zirkon ZSP yang telah digiling selama 5 jam dengan ditambah PVA 3 wt.%, serbuk ZSP, partikel memiliki bentuk bulat besar yang homogen dengan batas butir yang terlihat. Hal ini menunjukkan bahwa dengan penambahan PVA 3 wt.% dan penggilingan selama 5 jam dapat mempengaruhi kehomogenan partikel.



Gambar 4. 6 Citra SEM Serbuk Zirkon ZSP : (a) Serbuk ZS, sebelum digiling; (b) Serbuk ZSP, ditambahkan PVA kemudian digiling 5jam.

Serbuk ZSP yang telah digiling dengan penambah PVA 3 wt.% kemudian dilakukan pemanasan dengan dikalsinasi pada temperatur 900-1300 °C didapatkan mikrografi dari analisa citra SEM seperti pada Gambar 4.7.

Tampak serbuk ZSP pada temperatur 900 °C memiliki struktur kristal zirkonia tetragonal sehingga morfologi yang terlihat dari citra SEM berbentuk bulat kecil dengan ukuran yang nano-metrik, hal tersebut sesuai dengan hasil pengolahan data pola difraksi sinar-X menggunakan *software MAUD* seperti pada Tabel 4.5. Sedangkan, pada temperatur 1000 °C dan 1100 °C terlihat bentuk partikel yang semakin besar. Hal tersebut menunjukkan semakin meningkatnya temperatur kalsinasi akan bertambahnya ukuran pada partikel.



Gambar 4. 7 Citra SEM Serbuk Zirkon ZSP Kalsinasi pada Temperatur: (a) 900 °C (b) 1000 °C (c) 1100 °C (d) 1200 °C (e) 1300 °C

Pada serbuk ZSP kalsinasi pada temperatur 1200 °C, yaitu serbuk zirkon murni terlihat bentuk partikel bulat besar, bentuk tersebut mengindikasikan bahwa ukuran partikel yang besar akibat difusi antar senyawa zirkonia dengan silika berdifusi belum sempurna. Saat temperatur kalsinasi 1300 °C, terjadi dekomposisi, dengan partikel pada masing-masing fasa berbentuk bulat kecil dengan terlihat pertumbuhan partikel kristobalit rendah.

BAB V

PENUTUP

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, maka dapat disimpulkan bahwa:

1. Serbuk zirkon ($ZrSiO_4$) telah berhasil disintesis menggunakan bahan-bahan dasar serbuk $ZrCl_4$ (zirkonium klorid) dan larutan TEOS (*tetraethylorthosilicate*) melalui metode sol-gel dilanjutkan dengan kalsinasi. Pemberian aktivasi mekanik dengan *Planetary Ball Mill* selama 5 jam dan penambahan PVA sebesar 3 wt.% sebagai katalisator terhadap pertumbuhan kristal berpengaruh dalam pembentukan zirkon.
2. Temperatur kalsinasi berpengaruh terhadap pembentukan fasa. Pada temperatur 900-1100 °C terbentuk fasa kristalin zirkonia tetragonal dan silika amorf. Temperatur 1200 °C terbentuk zirkon fasa tunggal. Serbuk zirkon pada penelitian mengalami dekomposisi menjadi multifasa, yaitu fasa zirkon, fasa zirkonia tetragonal, dan fasa kristobalit rendah pada temperatur 1300 °C. Dengan komposisi fasa zirkon 93%, fasa zirkonia tetragonal 3%, dan fasa kristobalit rendah 4%. Serbuk zirkon pada penelitian ini mengalami dekomposisi sebesar 95,96%.
3. Temperatur kalsinasi berpengaruh terhadap ukuran kristal. Fasa zirkonia tetragonal pada temperatur 900 °C, 1000 °C dan 1100 °C memiliki ukuran kristal nanometrik, yaitu 4 nm, 7 nm, dan 18 nm. Seiring meningkatnya temperatur kalsinasi akan bertambahnya ukuran kristal. Zirkon fasa tunggal yang dihasilkan

pada temperatur 1200 °C memiliki ukuran subnanometrik, yaitu 170 nm. Sedangkan, temperatur 1300 °C fasa zirkon berukuran 80nm, fasa zirkonia tetragonal berukuran 91 nm, dan fasa kristobalit rendah berukuran 33 nm.

4. Dari hasil citra SEM terlihat morfologi serbuk ZSP yang telah dikalsinasi 900-1300 °C berbentuk bulat lonjong dengan batas butir yang telah terlihat jelas. Hasil citra SEM menunjukkan ukuran partikel yang semakin bertambah seiring meningkatnya temperatur kalsinasi.

5.2 Saran

Berdasarkan hasil dari penelitian ini, diperlukan pengkajian literatur lebih lanjut mengenai pengaruh PVA terhadap pembentuk serbuk zirkon, dan disarankan dilakukan penelitian lebih lanjut terhadap pembentukan serbuk zirkon murni yang berukuran orde nano.

DAFTAR PUSTAKA

- Abdelkader, A.M., Daher, A., El-Kashef, E., 2008. Novel decomposition method for zircon. *J. Alloys Compd.* 460, 577–580. doi:10.1016/j.jallcom.2007.06.032
- Ahmadazeh, M., Ataie, A., Mostafavi, E., 2015. The effects of mechanical activation energy on the solid-state synthesis process of BiFeO₃. *J. Alloys Compd.* 622, 548–556.
- Aksel, C., 2002. The influence of zircon on the mechanical properties and thermal shock behaviour of slip-cast alumina–mullite refractories. *Mater. Lett.* 57, 992–997.
- Alarcón, J., 2000. Crystallization behaviour and microstructural development in ZrSiO₄ and V-ZrSiO₄ solid solutions from colloidal gels. *J. Eur. Ceram. Soc.* 20, 1749–1758.
- Del Monte, F., Larsen, W., Mackenzie, J.D., 2000. Chemical interactions promoting the ZrO₂ tetragonal stabilization in ZrO₂–SiO₂ binary oxides. *J. Am. Ceram. Soc.* 83, 1506–1512.
- Du, C., Yuan, Q., Yang, Z., 1999b. Lowering the synthesis temperature of zircon powder by yttria addition. *J. Mater. Sci. Lett.* 18, 965–966.
- El Discha, F., Rahmania A., A., 2014. Perancangan Pabrik Polivinil Alkohol dari Vinil Asetat Monomer dan Metanol dengan Kapasitas 30.000 ton/tahun. Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta.
- Ellison, A.J.G., Navrotsky, A., 1992. Entalphy of formation of zircon. *J. AM Cer Soc* 75, 1430–1433.
- Elsner, H., 2013. Zircon-Insufficient Supply in the Future? Deutsche Rohstoffagentur (DERA) in der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe.
- Emadi, R., dkk, 2015. Effect of temperature on the reaction sintering of mechanically activated ZrSiO₄–Al₂O₃ mixture. *Ceram. Int.* 41, 14400–14405.
- Focke, W.W., Manhique, A., Carter, R., 2002. Lattice model for estimating the opacity of white coatings. *J. Am. Ceram. Soc.* 85, 1139–1144.
- Fu Yui, T., 2010. Insight From Zircon.

- Hsueh-Liang, C., Weng-Sing, H., Cheng-Li, W., 2014. Thermal behavior and phase transformation of $ZrO_2-10\%SiO_2$ precursor powder prepared by a co-precipitation route without adding stability agent. *J. Alloys Compd.* 616, 413–419.
- Itoh, T., 1992. Formation of polycrystalline zircon ($ZrSiO_4$) from amorphous silica and amorphous zirconia. *J. Cryst. Growth* 125, 223–228.
- Kaiser, A., Lobert, M., Telle, R., 2008. Thermal stability of zircon ($ZrSiO_4$). *J. Eur. Ceram. Soc.* 28, 2199–2211. doi:10.1016/j.jeurceramsoc.2007.12.040
- Kanno, Y., 1989. Thermodynamic and crystallographic discussion of the formation and dissociation of zircon. *J Mater Sci* 24, 2415–2420.
- Latif, C., dkk, 2014. Pengaruh Variasi Temperatur Kalsinasi Pada Struktur Silika. *J. Sains Dan Seni POMITS* 3, No.1.
- Mahmoud, M.E., Nabil, G.M., Mahmoud, S.M.E., 2015. High performance nano-zirconium silicate adsorbent for efficient removal of copper (II), cadmium (II) and lead (II). *J. Environ. Chem. Eng.* 3, 1320–1328. doi:10.1016/j.jece.2014.11.027
- Mountjoy, G., Anderson, R., Newport, R.J., Smith, M.E., 2000. The effect of zirconia content on the structure of zirconia-silica xerogels as determined by x-ray and neutron diffraction and Zr K-edge EXAFS and XANES. *J. Phys. Condens. Matter* 12, 3505–3519. doi:10.1088/0953-8984/12/15/301
- Navio, J.A., Marchena, F.J., Macias, M., Colón, G., Avilés, M.A., Sanchez-Soto, P.J., 1997. Preparation and characterization of amorphous ZrO_2-SiO_2 composite powders processed by sol-gel chemistry. *J. Sol-Gel Sci. Technol.* 10, 165–175.
- Peko, C., Groth, B., Nettleship, I., 2010. The Effect of Polyvinyl Alcohol on the Microstructure and Permeability of Freeze-Cast Alumina. *J. Am. Ceram. Soc.* 93, 115–120. doi:10.1111/j.1551-2916.2009.03398.x
- Pirkle, F.L., Podmeyer, D.A., 1988. Zircon: origin and uses. *Transactions* 292, 1–20.
- Poernomo, H., 2012. INFORMASI UMUM ZIRKONIUM.

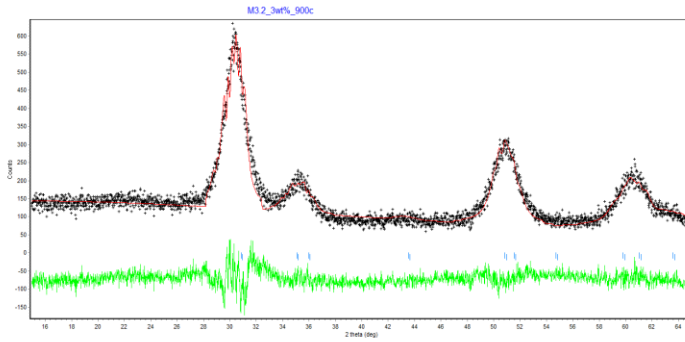
- Pradhan, S.K., Sinha, M., 2005. Microstructure characterization of nanocrystalline $ZrSiO_4$ synthesized by ball-milling and high-temperature annealing. *J. Appl. Crystallogr.* 38, 951–957. doi:10.1107/S0021889805029031
- Shoyama, M., N. Matsumoto, 1998. 1998_sol-gel synthesis of zircon.pdf.
- Skoda, D., Styskalik, A., Moravec, Z., Bezdicka, P., Pinkas, J., 2015. Templated non-hydrolytic synthesis of mesoporous zirconium silicates and their catalytic properties. *J. Mater. Sci.* 50, 3371–3382. doi:10.1007/s10853-015-8888-1
- Srikanth, S., Devi, V.L., Kumar, R., 2015. Unfolding the complexities of mechanical activation assisted alkali leaching of zircon ($ZrSiO_4$). *Hydrometallurgy* 157, 159. doi:10.1016/j.hydromet.2015.08.004
- Tartaj, P., De Jonghe, L.C., 2000. Preparation of nanospherical amorphous zircon powders by a microemulsion-mediated process. *J. Mater. Chem.* 10, 2786–2790. doi:10.1039/b002720k
- Terki, R., Bertrand, G., Aourag, H., 2005. Full potential investigations of structural and electronic properties of $ZrSiO_4$. *Microelectron. Eng.* 81, 514–523. doi:10.1016/j.mee.2005.03.055
- Tu, H., Duan, T., Ding, Y., Lu, X., Tang, Y., 2015. Phase and microstructural evolutions of the CeO_2 – ZrO_2 – SiO_2 system synthesized by the sol–gel process. *Ceram. Int.* 41, 8046–8050. doi:10.1016/j.ceramint.2015.02.155
- Veytizou, C., Quinson, J.-F., Douy, A., 2000. Sol–gel synthesis via an aqueous semi-alkoxide route and characterization of zircon powders. *J. Mater. Chem.* 10, 365–370.
- Veytizou, C., Quinson, J.-F., Valfort, O., Thomas, G., 2001. Zircon formation from amorphous silica and tetragonal zirconia: kinetic study and modelling. *Solid State Ion.* 139, 315–323.
- Wang, F., Liu, D.W., Zhu, J.F., Li, D., 2011. Microwave Hydrothermal Synthesis of $ZrSiO_4$ Nano-Powders. *Adv. Mater. Res.* 295–297, 1485–1488. doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.295-297.1485

- Wogo, H.E., Segu, J.O., Ola, P.D., 2016. Sintesis Silika Gel Terimobilisasi Dithizon Melalui Proses Sol-Gel. *J. Ilm. Berk. Sains Dan Terap. Kim.* 5, 84–95.
- Ying, S., Xiaoxian, H., Dongsheng, Y., 1994. Effect of natural zircon powder as seeds on the gel synthesis of zircon powder. *Mater. Lett.* 21, 79–83.

LAMPIRAN

HASIL LUARAN RIETICA

A. ZSP KALSINASI 900 °C



Gambar 1 Hasil Luaran Rietica ZSP kalsinasi 900 °C

Parameter Global:

GoF = 2,023

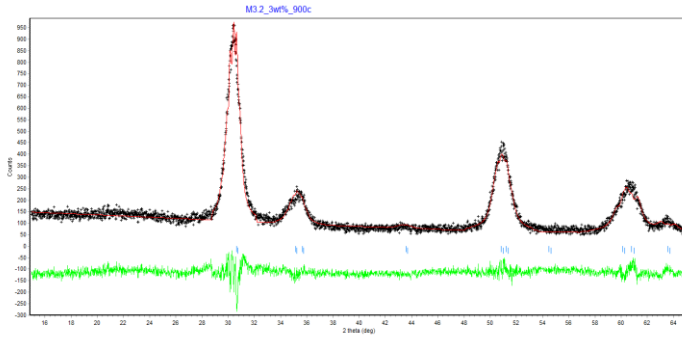
Rbragg = 1,45

Rp = 9,12

Rwp = 11,66

Rexp = 8,20

B. ZSP KALSINASI 1000 °C

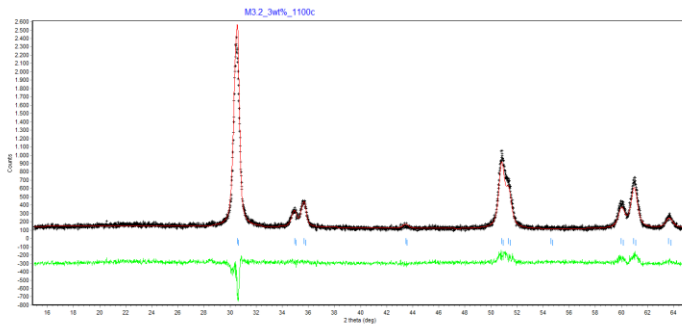


Gambar 2 Hasil Luaran Rietica ZSP kalsinasi 1000 °C

Parameter Global:

GoF	= 1,85	Rbragg	= 1,45
Rp	= 8,97	Rwp	= 11,46
Rexp	= 8,42		

C. ZSP KALSINASI 1100 °C



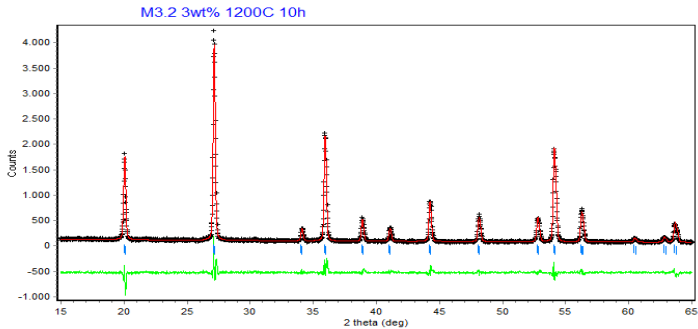
Gambar 3 Hasil Luaran Rietica ZSP kalsinasi 1100 °C

Parameter Global:

GoF	= 2,24	Rbragg	= 7,57
Rp	= 8,55	Rwp	= 10,57

$$R_{\text{exp}} = 7,06$$

D. ZSP KALSINASI 1200 °C



Gambar 4 Hasil Luaran Rietica ZSP kalsinasi 1200 °C

Parameter Global:

$$\text{GoF} = 2,18$$

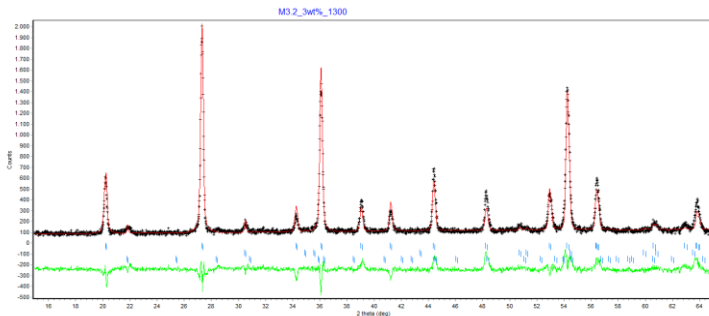
$$R_{\text{bragg}} = 4,82$$

$$R_p = 8,71$$

$$R_{\text{wp}} = 11,34$$

$$R_{\text{exp}} = 7,67$$

E. ZSP KALSINASI 1300 °C



Gambar 5 Hasil Luaran Rietica ZSP kalsinasi 1300 °C

Parameter Global:

GoF = 3,12

Rbragg2 = 5,27

Rp = 11,00

Rexp = 7,95

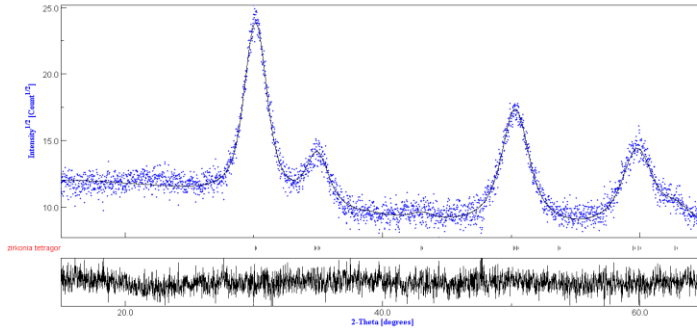
Rbragg1 = 9,89

Rbragg 3 = 5,13

Rwp = 14,04

HASIL LUARAN MAUD

A. ZSP KALSINASI 900 °C



Gambar 6 Hasil Luaran MAUD ZSP kalsinasi 900 °C

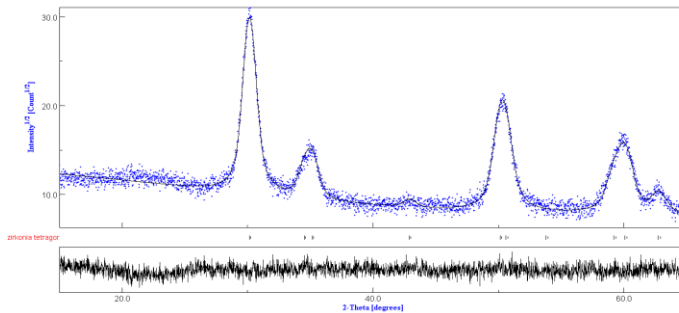
Parameter Global:

Sig = 1,13

Rw = 9,30 Rwnb = 7,89 Rb= 7,21

Rexp = 8,21

B. ZSP KALSINASI 1000 °C



Gambar 7 Hasil Luaran MAUD ZSP kalsinasi 1000 °C

Parameter Global:

Sig = 1,13

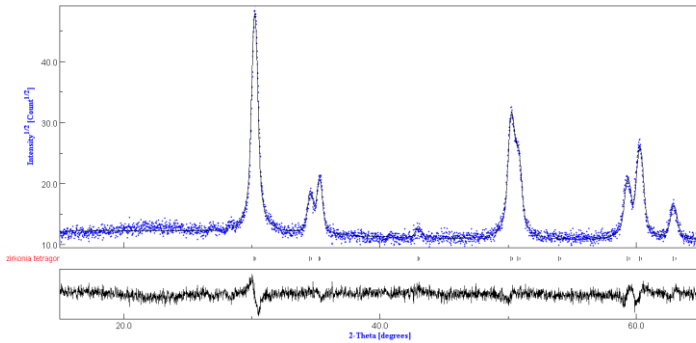
Rw = 9,58

Rexp = 8,45

Rwnb= 7,00

Rb= 7,36

C. ZSP KALSINASI 1100 °C



Gambar 8 Hasil Luaran MAUD ZSP kalsinasi 1100 °C

Parameter Global:

Sig = 1,35

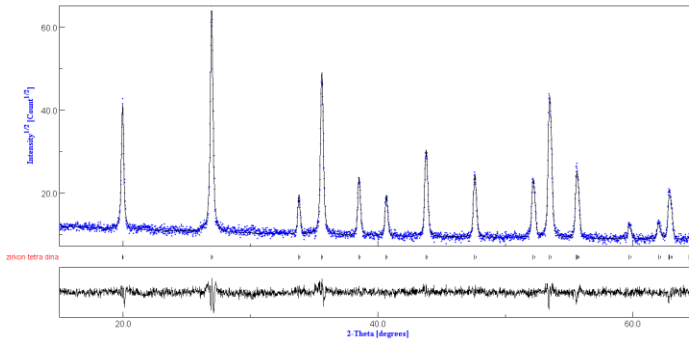
Rw = 9,62

Rexp = 7,08

Rwnb= 9,46

Rb= 7,69

D. ZSP KALSINASI 1200 °C



Gambar 9 Hasil Luaran MAUD ZSP kalsinasi 1200 °C

Parameter Global:

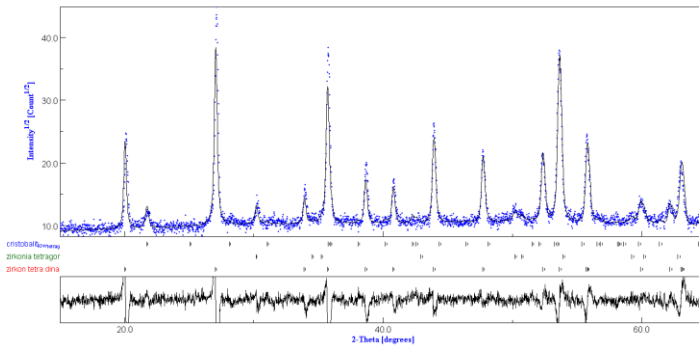
Sig = 1,39

Rw = 10,74

Rexp = 7,70

Rwbn= 10,09 Rb= 8,3

E. ZSP KALSINASI 1300 °C



Gambar 10 Hasil Luaran MAUD ZSP kalsinasi 1300 °C

Parameter Global:

Sig = 2,66

Rw = 21,15 Rwnb = 31,70 Rb = 14,89

Rexp = 7,93

BIOGRAFI PENULIS



Alfa Dinar Callista Putri, lahir di Nganjuk pada tanggal 02 Juni 1995, merupakan anak pertama dari dua bersaudara pasangan Hadi Purnomo dan Subingah. Penulis telah menempuh pendidikan formal di SDN Mekar Mukti 06, SMPN 1 Cikarang Utara, SMAN 1 Cikarang Utara, dan S1 Fisika Institut Teknologi

Sepuluh Nopember angkatan 2013 dengan NRP 1113100108. Di jurusan Fisika ini, penulis mengambil bidang minat material. Selama menjadi mahasiswa S1 Fisika ITS, penulis pernah menjabat sebagai Bendahara Umum 2 HIMASIKA 2014/2015, Sekretaris Departemen Syiar FOSIF 2015/2016, dan Asisten Laboratorium FisLab bidang minat material. Akhir kata apabila ada kritik dan saran, dapat dikirim ke email: alfadinarcallista02@gmail.com