TUGAS AKHIR – SF 184801

KARAKTERISASI TERMOMEKANIK KOMPOSIT BERBASIS PMMA DENGAN PENGISI NANO-ZIRKON VARIASI UKURAN MENGGUNAKAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER* (DMA)

WIWIT WULANDARI
NRP. 01111640000003

Dosen Pembimbing
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

Departemen Fisika
Fakultas Sains dan Analitika Data
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2020

TUGAS AKHIR – SF 184801

KARAKTERISASI TERMOMEKANIK KOMPOSIT BERBASIS PMMA DENGAN PENGISI NANO-ZIRKON VARIASI UKURAN MENGGUNAKAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER* (DMA)

WIWIT WULANDARI
NRP. 01111640000003

Dosen Pembimbing
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

Departemen Fisika
Fakultas Sains dan Analitika Data
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2020

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

FINAL PROJECT – SF 184801

THE THERMOMECHANICAL PROPERTIES OF PMMA-BASED COMPOSITES WITH VARIATION SIZE OF NANO-ZIRCON FILLERS USING DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER (DMA)

WIWIT WULANDARI
NRP. 01111640000003

Advisor
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

Departement of Physics
Faculty of Science and Data Analytics
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2020

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

LEMBAR PENGESAHAN

KARAKTERISASI TERMOMEKANIK KOMPOSIT BERBASIS PMMA DENGAN PENGISI NANO-ZIRKON VARIASI UKURAN MENGGUNAKAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER* (DMA)

TUGAS AKHIR

Diajukan Guna Memenuhi Persyaratan untuk
Memperoleh Gelar Sarjana Sains
pada
Bidang Studi Fisika Material
Program Studi S1 Departemen Fisika
Fakultas Sains dan Analitika Data
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh:
WIWIT WULANDARI
01111640000003

Disetujui oleh Pembimbing Tugas Akhir

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

Surabaya, Juni 2020

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

KARAKTERISASI TERMOMEKANIK KOMPOSIT BERBASIS PMMA DENGAN PENGISI NANO-ZIRKON VARIASI UKURAN MENGGUNAKAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER* (DMA)

Nama	**: WIWIT WULANDARI**
NRP	**: 01111640000003**
Departemen	**: Fisika F. SAINS-ITS**
Dosen Pembimbing	**: Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.**

Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui sifat termomekanik dari komposit berbasis PMMA dengan pengisi (*filler*) nano-zirkon (n-$ZrSiO_4$) yang ukurannya divariasi menggunakan instrumen *Dynamic Mechanical Analyzer* (DMA). Serbuk nano-zirkon yang digunakan adalah hasil ekstraksi pasir zirkon dari Kalimantan Tengah. Sintesis zirkon meliputi proses separasi magnet, perendaman dengan HCl, perendaman NaOH, dan pencucian dengan akuades. Variasi ukuran nano-zirkon sebagai pengisi dilakukan melalui penggilingan serbuk zirkon hasil sintesis menggunakan *ball milling* dengan variasi waktu 5 dan 15 jam. Uji fasa serbuk zirkon dilakukan dengan XRD. Serbuk zirkon hasil penggilingan kemudian dikompositkan dengan PMMA sebagai matriksnya. Serbuk zirkon tanpa giling juga dijadikan pengisi komposit dan digunakan sebagai pembanding. Sementara itu, pengaruh komposisi nano-zirkon diteliti dengan variasi penambahan serbuk nano-zirkon sebagai pengisi (1; 2,5; dan 5 wt.%). Kemudian, keberhasilan sintesis komposit PMMA/nano-zirkon diuji melalui karakterisasi XRD dan FTIR. Sementara itu, pengujian SEM-EDX dilakukan untuk mendapatkan informasi mengenai morfologi pengisi maupun komposit PMMA/nano-zirkon dan distribusi nano-zirkon di dalam PMMA sebagai matriks. Karakterisasi termomekanik dilakukan

menggunakan instrumen DMA dengan mode tarik (*tensile*). Karakterisasi XRD dan FTIR mengkonfirmasi keberhasilan sintesis komposit PMMA/nano-zirkon. Hasil karakterisasi DMA menunjukkan bahwa semakin kecil ukuran pengisi dan semakin besar fraksi volum pengisi menyebabkan peningkatan modulus simpan pada temperatur ruang sebesar 1,3 kali dan semakin menurun seiring meningkatnya temperatur. Temperatur transisi gelas (T_g) komposit mengalami peningkatan sebesar 16 °C apabila dibandingkan dengan PMMA murni.

Kata kunci: *DMA, Komposit, Nano-zirkon, PMMA, Termomekanik*

THE THERMOMECHANICAL PROPERTIES OF PMMA-BASED COMPOSITES WITH VARIATION SIZE OF NANO-ZIRCON FILLERS USING DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER (DMA)

Name	**: WIWIT WULANDARI**
NRP	**: 01111640000003**
Department	**: Physics, F. SCIENCE-ITS**
Advisors	**: Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.**

Abstract

This study aims to determine the thermomechanical properties of PMMA-based composites with variation size of nano-zircon fillers (n-ZrSiO4) by using a Dynamic Mechanical Analyzer (DMA) instrument. The nano-zircon powder was extracted from zircon sand originally from Central Kalimantan. The extraction and purification included magnetic separation, leaching with HCl, reacting with NaOH and rinsing using distilled water. The nano-zircon powder was made through a ball milling method for 5 and 15 hours. XRD was used to confirm the formation of the nano-zircon powders. The composites were synthesized by mixing the powders with PMMA as the matrix where the n-Z powder composition was also varied (1; 2,5; and 5 wt.%). Then, the success of n-Z/PMMA composites synthesis was characterized using XRD and FTIR instruments. Meanwhile, a characterization using SEM-EDX was carried out to obtain information about the morphology of the n-Z/PMMA composites and the distribution of n-Z in the PMMA as a matrix. The thermomechanical characterization was carried out using DMA instruments with tensile mode. Results showed that the reducing filler size and increasing filler composition cause an increase in storage modulus at room temperature by 1.3 times. The modulus decreasd with increasing temperature. The glass transition temperature

(T_g) of the composites increased by 16 ° C when compared to the pure PMMA.

Key words: *Composite, DMA, Nano-zircon, PMMA, Thermomechanical*

KATA PENGANTAR

Segala puji dan syukur penulis panjatkan kehadirat Allah SWT yang telah melimpahkan berkah, rahmat, dan hidayah-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan Laporan Tugas Akhir sebagai syarat wajib untuk memperoleh gelar sarjana strata satu (S1) di Departemen Fisika, Fakultas Sains dan Analitika Data, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya dengan judul:

"KARAKTERISASI TERMOMEKANIK KOMPOSIT BERBASIS PMMA DENGAN PENGISI NANO-ZIRKON VARIASI UKURAN MENGGUNAKAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYZER* (DMA)"

Penulis dapat menyelesaikan Laporan Tugas Akhir ini tidak lepas dari motivasi, bimbingan, dorongan penuh cinta serta doa dari berbagai pihak. Oleh karena itu, penulis ingin mengucapkan terima kasih yang setulus-tulusnya kepada:

1. Bapak Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D. selaku dosen pembimbing yang senantiasa memberikan ilmu, bimbingan, dan motivasi, sehingga penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir ini.
2. Keluarga tercinta, Bapak, Ibu, Adik Annisa dan Adik Dinda yang dengan tulus selalu memberi do'a dan semangat kepada penulis.
3. Bapak Dr. Gatut Yudoyono, MT. selaku Ketua Departemen Fisika Fakultas Sains dan Analitika Data ITS, yang telah memberikan kemudahan sarana dan prasarana kepada penulis selama kuliah hingga terselesaikannya Tugas Akhir ini.
4. Mbak Aini yang senantiasa membimbing, memotivasi, dan memberikan ilmu-ilmu baru kepada penulis dengan penuh rasa sabar, sehingga penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir ini.

5. Tim DMA lainnya (Mas Allif, Mbak Novita dan Mbak Anisa) yang selalu memberikan ilmu, bimbingan, semangat dan motivasi kepada penulis, sehingga penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir ini.
6. Seluruh teman-teman Tim Bahan Alam terutama Mas Wahyu yang selalu memberikan ilmu, semangat dan motivasi kepada penulis.
7. Teman-teman seangkatan Sirius (Riski, Muniroh, Rheina, Umi, Axl, Rosi, Devi, Lana, Syabania, Ari, Eka Cahya, Aris dll) yang telah memberikan dukungan selama penulis berkuliah hingga terselesaikannya Tugas Akhir ini.
8. Mas Angga yang selalu memberikan dukungan penuh cinta selama penulis berkuliah hingga terselesaikannya Tugas Akhir ini.
9. Teman-teman Nggombol (Joe, Farah, Ageta, Arizka, Ellak dan Fitri) yang selalu memberi semangat, motivasi dan dukungan yang tulus kepada penulis.
10. Semua pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu per satu yang telah membantu dalam penyelesaian Tugas Akhir ini.

Penulis menyadari bahwa penulisan Laporan Tugas Akhir ini masih jauh dari sempurna. Oleh karena itu, penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun untuk menyempurnakan Laporan Tugas Akhir ini. Semoga Laporan Tugas Akhir ini bermanfaat.

Surabaya, Juni 2020

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL ..... **i**
LEMBAR PENGESAHAN..... Error! Bookmark not defined.
Abstrak..... **vii**
Abstract..... **ix**
KATA PENGANTAR..... **xi**
DAFTAR ISI..... **xiii**
DAFTAR GAMBAR..... **xv**
DAFTAR TABEL..... **xvii**
DAFTAR LAMPIRAN..... **xix**
BAB I..... **1**
PENDAHULUAN..... **1**
1.1 Latar Belakang..... 1
1.2 Rumusan Masalah..... 4
1.3 Tujuan Penelitian..... 4
1.4 Batasan Masalah..... 5
1.5 Manfaat Penelitian..... 5
1.6 Sistematika Penulisan..... 5
BAB II..... **7**
TINJAUAN PUSTAKA..... **7**
2.1 *Poly* (*methyl metacrylate*)..... 7
2.2 Zirkon ($ZrSiO_4$)..... 9
2.3 Nanokomposit..... 12
2.4 *Dynamic Mechanical Analyzer* (DMA)..... 13
BAB III..... **17**
METODOLOGI..... **17**
3.1 Ekstraksi dan Sintesis Nano-zirkon..... 17
3.2 Sintesis Komposit PMMA/Nano-zirkon Menggunakan Metode *Liquid*..... 20
3.3 Pengujian Menggunakan Instrumen DMA..... 21
3.4 Diagram Alir Penelitian..... 21
BAB IV..... **25**

HASIL DAN PEMBAHASAN 25
4.1 Sintesis Serbuk Nano-Zirkon 25
4.1.1 Analisis Pola Difraksi Serbuk Nano-Zirkon 25
4.1.2 Analisis Pola Spektroskopi FTIR Serbuk Nano-Zirkon 28
4.1.3 Analisis Citra SEM Serbuk Nano-Zirkon 30
4.2 Sintesis Komposit PMMA/Nano-Zirkon 30
4.2.1 Analisis Pola Difraksi Komposit PMMA/Nano-Zirkon 30
4.2.2 Analisis Pola Spektroskopi FTIR Komposit PMMA/Nano-Zirkon 33
4.2.3 Analisis Citra SEM dan SEM-EDX Komposit PMMA/Nano-Zirkon 34
4.3 Hasil Uji DMA Komposit PMMA/Nano-Zirkon 40
4.4 Analisis Sifat Optik Komposit PMMA/Nano-Zirkon 46
BAB V 50
KESIMPULAN DAN SARAN 50
5.1 Kesimpulan 50
5.2 Saran 51
DAFTAR PUSTAKA 52
LAMPIRAN A 55
Hasil Analisis Data XRD dan FTIR 55
LAMPIRAN B 57
Hasil Analisis Data SEM dan SEM/EDX 57
BIODATA PENULIS 63

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Rumus struktur PMMA (Mittal, 2012)..... 7
Gambar 2.2 Struktur Zirkon yang Diproyeksikan Pada Bidang (100) (Finch dan Hanchar, 2003)..... 11
Gambar 2.3 Hubungan tegangan sinusoidal terhadap regangan dan deformasi (Menard, 2008)..... 14
Gambar 2.4 (a) Material Dikenai Tegangan Sinusoidal, (b) Material Elastis Sempurna, (c) Material Viskus, dan (d) Material Viskoelastis (Menard, 2008)..... 14

Gambar 3.1 Diagram alir sintesis serbuk nano-zirkon..... 22
Gambar 3.2 Diagram alir sintesis serbuk nano-zirkon..... 23

Gambar 4.1 Pola XRD serbuk nano-zirkon tanpa anil 0, 5, dan 15 jam..... 26
Gambar 4.2 Spektrum FTIR serbuk nano-zirkon giling 0, 5, dan 15 jam tanpa anil..... 29
Gambar 4.3 Citra SEM serbuk nano-zirkon (a) ZM0; (b) ZMTA5; dan (c) ZMTA15..... 31
Gambar 4.4 Pola Difraksi PMMA, nano-zirkon dan komposit PMMA/nano-zirkon giling 0, 5, dan 15 jam tanpa anil..... 33
Gambar 4.5 Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5..... 34
Gambar 4.6 Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15..... 35
Gambar 4.7 Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon (a) ZM0 1 wt.% dan (b) ZM0 2,5 wt.%..... 38
Gambar 4.8 Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon (a) ZMTA5 1 wt.% dan (b) ZMTA5 2,5 wt.%..... 39

Gambar 4.9 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 1 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 40
Gambar 4.10 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 41
Gambar 4.11 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 1 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile*..... 41
Gambar 4.12 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile*..... 43
Gambar 4.13 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 43
Gambar 4.14 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5..... 44
Gambar 4.15 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15..... 44
Gambar 4.16 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 45
Gambar 4.17 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 46
Gambar 4.18 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 46
Gambar 4.19 Absorbansi komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 .. 49
Gambar 4.20 Absorbansi komposit PMMA/ nano-zirkon ZMTA5 50
Gambar 4.21 Absorbansi komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 50

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Sifat Fisis Material PMMA 8
Tabel 2.2 Sifat Fisis Material Zirkon ($ZrSiO_4$) 10

Tabel 4.1 Parameter Kecocokan Analisis Sampel Serbuk ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan menggunakan *software Rietica* 27
Tabel 4.2 Komposisi dan Parameter Kisi Fasa Sampel Serbuk Zirkon dengan Variasi Waktu Penggilingan 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil 27
Tabel 4.3 Parameter Kecocokan Analisis Sampel Serbuk ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan menggunakan *software MAUD* 27
Tabel 4.4 Ukuran Kristal dan Regangan Serbuk Zirkon dengan Variasi Waktu Penggilingan 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil 28
Tabel 4.5 Perbandingan Bilangan gelombang Puncak Spektrum FTIR antara Referensi dengan Serbuk Nano-zirkon Giling 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil 29
Tabel 4.6 Perbandingan Bilangan gelombang Puncak Spektrum FTIR antara Referensi dengan Komposit PMMA/nano-zirkon 35
Tabel 4.7 Nilai $I_{dispersibilitas}$ Sampel Komposit PMMA/Nano-zirkon ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan Variasi Komposisi Pengisi 42
Tabel 4.8 Nilai Modulus Simpan (E') Komposit PMMA/Nano-zirkon ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 43
Tabel 4.9 T_g komposit PMMA/nano-zirkon ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 47

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

DAFTAR LAMPIRAN

Gambar 1. Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 58
Gambar 2. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 5 wt.% 60
Gambar 3. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 5 wt.% 60
Gambar 4. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 1 wt.% 61
Gambar 5. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 2,5 wt.% 61
Gambar 6. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 5 wt.% 62
Gambar 7. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 62
Gambar 8. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 5wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 63
Gambar 9. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 1wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 63
Gambar 10. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 64
Gambar 11. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile* 64

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Termomekanik merupakan sifat dari sebuah material akibat perlakukan panas dan pembebanan mekanik. Sifat termomekanik ini dapat diamati pada beberapa jenis material seperti material polimer, keramik maupun logam. Dalam material polimer, studi sifat termomekanik dapat digunakan untuk mengetahui sifat mekanik, transisi termal, dan daya tahan komposit (Love, 2011). Dalam kehidupan sehari-hari, polimer mengambil peran penting di antaranya dalam berbagai bidang kehidupan, misalnya dalam bidang elektronik, industri manufaktur, energi, serta biomedis. Polimer memiliki kekuatan mekanik yang lemah dan stabilitas kimia yang baik (Yang dkk., 2018). Selain itu, polimer memiliki sifat-sifat menarik lain di antaranya densitas yang rendah, sifat viskoelastis dan fleksibilitas yang tinggi serta di dalam studi kasus tertentu menunjukkan kelembaman terhadap reaksi kimia (Padeste dan Neuhaus, 2015). Sifat viskoelastis yang dimiliki polimer dipengaruhi oleh perubahan lingkungan yaitu gaya dan temperatur. Sifat viskoelastis merupakan hal yang perlu diperhatikan dalam pengaplikasian polimer (Fauziyah, 2015).

Salah satu polimer yang menarik untuk diteliti adalah *poly (methyl methacrylate)* atau PMMA. Salah satunya, PMMA menjadi pusat perhatian peneliti akibat sifatnya yang transparan dan banyak diaplikasikan dalam pembuatan komposit (Mark, 1999). PMMA memiliki sifat yang unik seperti ketahanan terhadap cuaca dan stabilitas dimensi, jika dipadukan dengan sifat optik yang jernih maka memberi keuntungan pada sifat transmisi cahaya.

PMMA juga memiliki sifat termal yang cukup baik (Mittal, 2012). Di sisi lain, PMMA juga memiliki kelemahan, yaitu bersifat rapuh pada temperatur tinggi, resistansinya rendah terhadap bahan kimia dan permukaan yang mudah tergores (Mittal, 2012). Oleh karena itu, para peneliti memadukan PMMA dengan material lainnya. Salah satu material yang diharapkan dapat meningkatkan sifat PMMA adalah serbuk keramik, misalnya zirkon.

Zirkon ($ZrSiO_4$) adalah salah satu material keramik yang ketersediaannya di alam cukup melimpah di Indonesia; salah satunya di Kereng Pangi, Kalimantan Tengah. Zirkon memiliki sifat yang unggul, di antaranya koefisien ekspansi termal yang cukup rendah ($4{,}1\times10^{-6}$ °C^{-1} dalam rentang suhu 25-1400 °C). Selain itu, zirkon juga memiliki koefisien konduktivitas panas yang relatif rendah (5,1 Wm^{-1}°C^{-1} pada suhu ruang dan 3,5 Wm^{-1}°C^{-1} pada suhu 1000 °C) dan suhu disosiasi yang cukup tinggi (1675 °C). Diketahui pula bahwa daya tahan mekanik atau kekuatan lentur zirkon terhadap bahan kimia dalam suhu yang sangat tinggi yaitu dalam rentang suhu 1200-1400 °C. Dengan daya tahan mekanik yang dimilikinya, zirkon merupakan material yang memiliki potensi menonjol untuk diaplikasikan dalam bidang industri maupun struktural (Musyarofah dkk., 2019).

Belakangan ini, ukuran pengisi atau *filler* menjadi perbincangan di dunia penelitian. Ukuran material nanometrik diharapkan memberikan sifat yang lebih baik dan unggul apabila dibandingkan dengan material yang memiliki ukuran mikron. Beberapa penelitian sebelumnya tentang pengaruh pengisi berukuran nanometrik terhadap kekuatan mekanik komposit telah berhasil dilakukan. Misalnya, Patidar dkk. telah meneliti tentang pengisi nano-partikel *cadium sulfide* (CdS) yang dikompositkan dengan PMMA untuk meningkatkan nilai modulus penyimpanan dan transisi gelas. Pada komposisi 2 wt.% mengalami peningkatan

sebesar 0,3 GPa, 4 wt.% meningkat sebesar 0,5 GPa, dan 6 wt.% meningkat sebesar 1,7 GPa (Patidar dkk., 2011). Selain itu, Sari (2020) telah berhasil meneliti tentang pengisi nano-kuarsa yang dikompositkan dengan PMMA untuk meningkatkan nilai modulus simpan dan temperatur transisi gelas. Pada waktu penggilingan 15 jam berhasil mempreparasi nano-kuarsa dan meningkatkan nilai modulus simpan maksimum sebesar 1,5 GPa dan nilai temperatur transisi gelas meningkat sebesar 14 °C dengan komposisi 5 wt.% silika. Sedangkan, pada waktu penggilingan 20 jam berhasil meningkatkan nilai modulus simpan maksimum sebesar 1 GPa dengan komposisi 5 wt.% silika dan temperatur transisi gelas meningkat sebesar 21 °C apabila dibandingkan dengan PMMA murni (Sari, 2020).

Selain itu, Haq (2019) juga telah berhasil meneliti mengenai PMMA yang dipadukan dengan serbuk zirkon berukuran nanometrik untuk meningkatkan modulus simpan dan temperatur transisi gelas. Pada komposisi 1 wt.% mengalami peningkatan modulus simpan sebesar 0,4 GPa; 2,5 wt.% meningkat sebesar 1,1 GPa; dan 5 wt.% meningkat sebesar 1,2 GPa. Pada komposisi 1 wt.% nilai temperatur transisi gelas meningkat sebesar 3 °C; 2,5 wt.% meningkat sebesar 8 °C; dan 5 wt% meningkat sebesar 13 °C (Haq, 2019). Akan tetapi, pengaruh penambahan pengisi nano-zirkon yang telah dilakukan sebelumnya belum secara lengkap membahas pengaruh penggilingan pada ukuran zirkon dan sifat termomekaniknya sehingga diperlukan penelitian lebih lanjut.

Penelitian ini melaporkan sintesis serbuk zirkon berukuran nanometrik (nano-zirkon) dengan variasi waktu penggilingan pasir puya (zirkon) yang berasal dari Kalimantan Tengah. Serbuk zirkon hasil sintesis kemudian dijadikan pengisi untuk dipadukan dengan material PMMA dengan variasi komposisi 1 wt.%, 2,5 wt.%, dan 5 wt.% sehingga menjadi komposit PMMA/nano-zirkon. Material-

material dasar dikarakterisasi menggunakan XRD, FTIR, SEM dan SEM-EDX. Selanjutnya, komposit diuji dengan menggunakan instrumen *Dynamic Mechanical Analyzer* (DMA). Keunggulan pengujian dengan instrumentasi DMA adalah nilai modulus tariknya dapat dianalisis menurut perubahan suhu. Semakin besar nilai modulus tariknya, maka material diharapkan memiliki ketahanan terhadap beban mekanik yang baik. Sehingga, nilai modulus tarik dan pengaruh komposisi nano-zirkon sebagai pengisi atau *filler* terhadap komposit akan didapatkan.

1.2 Rumusan Masalah

Perumusan masalah yang diangkat pada penelitian ini meliputi beberapa hal sebagai berikut.

1. Bagaimana pengaruh variasi waktu penggilingan terhadap ukuran kristal zirkon?
2. Apakah komposit PMMA/nano-zirkon dengan pengisi serbuk nano-zirkon berhasil disintesis?
3. Bagaimana karakteristik sifat termomekanik dari komposit PMMA/nano-zirkon seiring berubahnya ukuran pengisi dan bertambahnya jumlah pengisi?

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut.

1. Mengetahui pengaruh variasi waktu penggilingan terhadap ukuran kristal zirkon.
2. Mendapatkan komposit PMMA/nano-zirkon dengan pengisi serbuk nano-zirkon.
3. Mengetahui karakteristik sifat termomekanik dari komposit PMMA/nano-zirkon dengan variasi ukuran pengisi dan seiring bertambahnya pengisi.

1.4 Batasan Masalah

Batasan masalah pada penelitian ini adalah sebagai berikut.

1. Zirkon yang digunakan berasal dari pasir puya Kereng Pangi, Kalimantan Tengah.
2. Variasi waktu penggilingan yang digunakan adalah 0,5, dan 15 jam.
3. Variasi komposisi nano-zirkon yang digunakan adalah 1; 2,5; dan 5 wt.%.
4. Mode pengujian DMA yang digunakan adalah mode tarik dengan variasi temperatur.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat yang didapat dari penelitian ini adalah sebagai berikut.

1. Memberikan wawasan mengenai salah satu cara pemanfaatan sumber daya alam pasir zirkon sebagai bahan dasar sintesis nano-zirkon untuk pengisi komposit PMMA/nano-zirkon.
2. Memberikan pandangan mengenai variasi waktu penggilingan terhadap ukuran kristal zirkon.
3. Memberikan pandangan mengenai pengaruh konsentrasi material pengisi (*filler*) nano-zirkon terhadap sifat termomekanik komposit PMMA/nano-zirkon.
4. Memberikan pandangan mengenai karakterisasi sifat termomekanik dengan instrumen DMA.

1.6 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan laporan Tugas Akhir ini terdiri atas abstrak yang menjabarkan tentang gambaran umum dari penelitian. Bab I Pendahuluan tersusun dari latar belakang, perumusan masalah, batasan masalah, tujuan penelitian, manfaat penelitian dan sistematika penulisan. Bab II Tinjauan Pustaka berisi dasar-

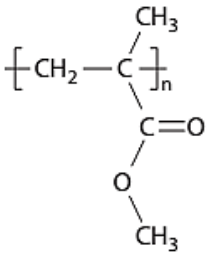
dasar teori dan kajian pustaka sebagai acuan penelitian laporan Tugas Akhir ini. Bab III Metodologi Penelitian menjabarkan tentang metode pengambilan data laporan Tugas Akhir. Bab IV menjabarkan hasil dan pembahasan dari penelitian. Bab V mengenai kesimpulan dan saran.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 *Poly* (*methyl metacrylate*)

PMMA atau *Poly (methyl methacrylate)* merupakan jenis polimer yang berasal dari monomer metil metakrilat. Gambar 2.1 menjelaskan bahwa PMMA memiliki struktur -[CH_2-$C(CH_3)(COOCH_3)$]-. PMMA merupakan polimer berbentuk transparan sehingga menjadi pusat perhatian di berbagai penelitian seperti pada proses pembuatan komposit (Mark, 1999). Secara umum, bentuk PMMA yang tidak berwarna memiliki kejernihan optik sangat baik, tidak berbau dan tidak mudah rapuh pada temperatur rendah (Mittal, 2012). PMMA memiliki tingkat sensitivitas yang cukup tinggi terhadap radiasi elektron. PMMA termasuk ke dalam material yang tidak mudah menyerap air dan memiliki densitas sebesar 1,19 g/cm^3 (Mark, 1999). Beberapa sifat fisis material PMMA dirangkum pada Tabel 2.1.



Gambar 2.1 Rumus struktur PMMA (Mittal, 2012).

Tabel 2.1 Sifat Fisis Material PMMA.

Sifat	Nilai
Berat jenis (g/cm^3)	1,18
Indeks bias	1,49
Total transmisi cahaya (%)	92
Kekerasan permukaan (RHM)	90
Kekuatan tarik saat patah (Mpa)	65
Ekspansi linier ($/°C \times 10^{-5}$)	7
Elongasi saat patah (%)	2,5
Absorpsi air (%)	0,3
Suhu transisi gelas (°C)	105
Suhu distorsi panas @ 0,45 Mpa (°C)	103
Suhu distorsi panas @ 1,8 Mpa (°C)	95
Rentang peleburan (°C)	130-140

PMMA merupakan polimer gelas berstruktur amorf. Dilihat dari segi optik, PMMA memiliki indeks bias yang bergantung pada jenisnya dengan rentang 1,49 hingga 1,51, daya transmisi sebesar 92% pada rentang bilangan gelombang tampak dan daya absorbsi yang kecil terhadap sinar *Ultra Violet* mencapai 260 nm (Mark, 1999; Mittal, 2012). Sedangkan dalam sifat mekanik, PMMA memiliki kekerasan, kekakuan, ketahanan terhadap cuaca dan abrasi yang baik. Selain itu, PMMA memiliki stabilitas dimensi dan sifat isolasi listrik yang sangat baik (Mittal, 2012). Dalam berbagai bidang, PMMA memiliki potensi yang besar di antaranya dalam bidang biomedis dimanfaatkan untuk bahan tambal tulang dan gigi (Barszczewska-Rybarek dkk., 2017). Sedangkan, di bidang optik dimanfaatkan untuk pembuatan *fiber optik* dan lensa pada lampu kendaraan bermotor (Otsuka dkk., 2009).

Di sisi lain, PMMA bersifat rapuh pada temperatur tinggi,

resistansinya rendah terhadap bahan kimia dan permukaan yang mudah tergores (Mittal, 2012). Sehingga penggunaan PMMA tidak dapat digunakan secara maksimal atau terbatas dalam aplikasi teknik (Liu dkk., 2010). Karena PMMA tidak dapat digunakan secara maksimal, maka banyak dilakukan penelitian mengenai PMMA untuk meningkatkan ketangguhannya melalui *nano* dan *microfiller* (Nussbaumer dkk., 2003; Tang dkk., 2006). Beberapa penelitian yang telah dilakukan yaitu mengenai nano partikel *cadium sulfide* (Cds) yang dicampurkan dengan PMMA untuk meningkatkan nilai modulus penyimpanan dan transisi gelas (Patidar dkk., 2011). Selain itu, dilakukan penelitian mengenai PMMA yang dicampurkan dengan material karet untuk meningkatkan nilai uji tariknya (Poomalai dan Varghese, 2011).

2.2 Zirkon ($ZrSiO_4$)

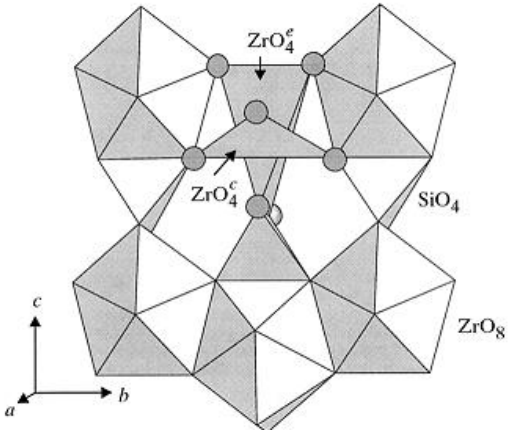
Zirkon ($ZrSiO_4$) sebagai salah satu material keramik dimana ketersediaannya di alam cukup melimpah. Zirkon ($ZrSiO_4$) merupakan komposisi alami yang terdiri dari zirkonia (ZrO_2) dan silika (SiO_2) (Brook, 2012). Pada umumnya, zirkon memiliki densitas sebesar 4,63 g/cm^3. Selain itu, pasir zirkon memiliki berbagai variasi warna di antaranya merah muda, kecoklatan, kekuningan, kemerahan, dan terkadang berwarna hijau, biru dan hitam (Elsner, 2013). Zirkon memiliki koefisien ekspansi termal yang cukup rendah yaitu $4{,}1\times10^{-6}$ °C^{-1} dalam suhu antara 25 °C sampai 1400 °C. Selain itu, zirkon juga memiliki koefisien konduktivitas panas yang rendah yaitu 5,1 Wm^{-1}°C^{-1} pada temperatur ruang dan 3,5 Wm^{-1}°C^{-1} pada temperatur 1000 °C. Suhu disosiasi pada zirkon cukup tinggi yaitu 1675 °C. Zirkon memiliki resistansi yang tinggi terhadap *thermal shock*. Di dalam aspek kimiawi, zirkon memiliki *chemical inertness* yang tinggi

(Musyarofah dkk., 2019). Di dalam peneletian Musyarofah dkk. menjelaskan bahwa daya tahan mekanik atau kekuatan lentur zirkon terhadap bahan kimia dalam suhu yang sangat tinggi yaitu dalam rentang suhu 1200-1400 °C. Dengan daya tahan mekanik yang dimilikinya menunjukkan bahwa zirkon merupakan material yang baik dalam bidang industri maupun aplikasi strukturalnya karena dalam proses pembentukan materialnya dapat dilakukan pada suhu yang sangat tinggi (Musyarofah dkk., 2019). Beberapa sifat fisis material zirkon dirangkum pada Tabel 2.2.

Seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.2, zirkon memiliki kisi Bravais *body-centered* tetragonal dengan 12 atom di setiap unit kisinya dan berada dalam grup ruang I4/amd (Srikanth dkk., 2015). Parameter kisi pada zirkon di antaranya adalah a = 0,653 nm dan b = c = 0,591 nm (Puthenkovilakam dkk., 2004). Pada satu unit sel terdapat empat grup ZrO_8^{12-} dan empat grup SiO_4^{4-}. Struktur ikatan di dalam satu unit zirkon adalah ikatan ZrO_8 yang sejajar dengan sumbu-z dan ikatan SiO_4 di setiap tepinya. Selain itu, ikatan SiO_4 yang terletak di sudut-sudut sel satuan dengan $ZrSiO_4$ sejajar dengan sumbu-x dan sumbu-y (Finch dan Hanchar, 2003).

Tabel 2.2 Sifat Fisis Material Zirkon ($ZrSiO_4$).

Sifat	**Nilai**
Densitas (g/cm^3)	4,63
Kekerasan (GPa)	8,5
Flexural strength (MPa)	320
Ketangguhan ($MPa.m^{1/2}$)	3
Tetapan dielektrik	10,7-12,6
Titik leleh (℃)	2550
Temperatur dekomposisi (℃)	1673



Gambar 2.2 Struktur zirkon yang diproyeksikan pada bidang (100) (Finch dan Hanchar, 2003).

Pada penelitian yang dilakukan oleh Parcianello dkk. menjelaskan bahwa nilai *Coefficient of Thermal Expansion* atau CTE yang rendah menyebabkan zirkon menjadi material keramik yang baik sebagai bahan refraktori (Parcianello dkk., 2012). Namun, belum sepenuhnya maksimal sebagai aplikasi material refraktori karena di dalam pasir belum sepenuhnya terkandung zirkon murni. Hal tersebut juga dibuktikan dalam penilitian yang dilakukan oleh Musyarofah dkk., untuk menghasilkan zirkon dengan tingkat kemurnian yang tinggi diperlukan proses sintesis yang sangat kompleks (Musyarofah dkk., 2019).

2.3 Nanokomposit

Komposit merupakan material yang dihasilkan dari gabungan dua atau lebih material dengan cara pencampuran homogen (T. A. Fadly 2016). Tujuan dilakukannya komposit agar menghasilkan material baru dengan karakteristik dan sifat mekanik yang lebih unggul. Komposit terdiri dari matriks dan *filler* (pengisi). Matriks merupakan material utama yang menjadi dasar pembentukan komposit dimana matriks akan mengikat *filler* atau penguat. Sedangkan *filler* atau penguat merupakan material yang ditambahkan ke dalam matriks untuk memperbaiki sifat - sifat matriks dalam membentuk material komposit (Hildayati, 2009).

Keunggulan sifat - sifat material dari hasil komposit antara lain: peningkatan sifat mekanik, stabiltas terhadap temperatur, ketahanan terhadap bahan kimia, permeasi gas, konduktivitas elektrik, *flame retardancy, scratch resistance,* hasil optik yang transparan, anti mikroba dan *smoke emissions* (Hildayati, 2009).

Hal - hal yang harus diperhatikan agar terbentuk material komposit yaitu (Fauziyah, 2015):

1. Modulus elastis dari komponen *filler* harus lebih tinggi daripada komponen matriksnya.
2. Perlu adanya ikatan antar permukaan yang kuat antara komponen matriks dengan *filler*.

Secara umum, terdapat beberapa jenis komposit di antaranya nano-komposit, komposit matriks logam, komposit dengan penguat *fiber* dan komposit hibrida yang banyak digunakan di bidang industri. Komposit tidak hanya diterapkan di bidang industri saja, material ini juga dapat diterapkan di bidang lainnya seperti dalam bidang transportasi, sifat ringan pada komposit dapat menambah percepatan dan menghemat penggunaan bahan bakar. Di dalam bidang energi seperti kincir angin terbuat dari material komposit yang ringan sehingga dapat mempercepat pergerakaan

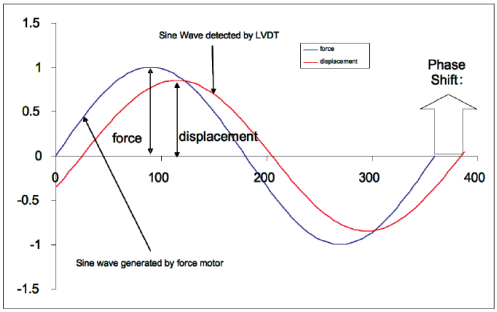
kincir dan menghasilkan energi yang lebih besar. Selain sifat komposit yang ringan, beberapa sifat unggul lainnya yaitu hemat dalam segi perawatannya, dapat didesain secara fleksibel, materialnya bersifat non korosif dan non konduktif (Dutta dkk., 2019).

Nano-komposit merupakan material berskala nanometrik dan berulang antar bentuk penyusun struktur yang berbeda. Ikatan antar partikel merupakan hal yang sangat berperan penting untuk meningkatkan dan membatasi sifat material pada nano-komposit. Jika semakin nanometrik ukuran partikel, maka luas permukaan yang berinteraksi semakin besar. Hal tersebut membuat ikatan antar partikel akan semakin kuat (Rijal dkk., 2008). Proses pembuatan material nano-komposit dapat dilakukan dengan cara menyisipkan nano-partikel sebagai *nanofiller* ke dalam matriks (Chitraningrum, 2008). Di dalam penelitian ini digunakan *poly (methyl methacrylate)* atau PMMA sebagai matriks dan nano-zirkon sebagai *filler* nya.

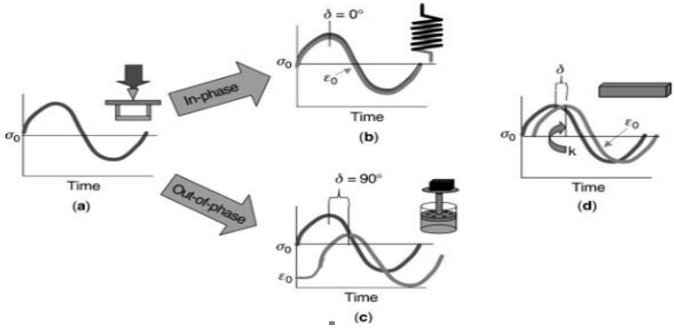
2.4 *Dynamic Mechanical Analyzer* (DMA)

Instrumentasi DMA (*Dynamic Mechanical Analyzer*) merupakan suatu alat yang digunakan untuk menganalisa sifat viskoelastis dari material polimer. Dimana viskoelastis merupakan kombinasi antara *elastic solid* dan *newton fluid* (Keskin dkk., 2014). Prinsip yang digunakan pada DMA dengan menerapkan beban sinusoidal yang berisolasi terhadap sampel dengan temperatur dan frekuensi, kemudian respon dari sampel tersebut akan dianalisis (Badawi, 2015). Sifat-sifat yang dapat diperkirakan di antaranya seperti sampel untuk mengalir dari *phase log* dan kekakuan dari pemulihan sampel (Gambar 2.3). Sifat-sifat tersebut menjelaskan kemampuan material dalam kehilangan energinya sebagai redaman dan kemampuan untuk pemulihan dari deformasi

akibat diberi perlakuan gaya berupa elastisitas (Menard, 2008).



Gambar 2.3 Hubungan tegangan sinusoidal terhadap regangan dan deformasi (Menard, 2008).



Gambar 2.4 (a) Material dikenai tegangan sinusoidal, (b) Material elastis sempurna, (c) Material viskus, dan (d) Material viskoelastis (Menard, 2008).

Hal tersebut dilakukan agar mengetahui temperatur transisi gelas (T_g), modulus simpan, modulus hilang dan relaksasi tegangan untuk menganlisis respon viskoelastis material (Badawi, 2015). Material dapat disebut elastis sempurna apabila tegangan responnya satu fase dengan tegangan awal yang diberikan (Gambar 2.4). Sedangkan, apabila tegangan respon berbeda fase sebesar 90°

maka material dapat disebut sebagai viskus sempurna (Gambar 2.4). Material dapat dikatakan viskoelastis apabila tegangan respon yang diberikan berperilaku di antara keduanya (Gambar 2.4) (Menard, 2008).

Terdapat dua komponen modulus kompleks di antaranya adalah modulus simpan dan modulus hilang. Kombinasi antara modulus simpan dan modulus hilang dapat disebut dengan *Modulus Young (E*).*

$E^*=E'+ iE''$ ……..……...……...……..……...(2.1)

Modulus simpan atau *storage modulus (E')* sebanding dengan modulus elastisitas yang menjelaskan sifat kekakuan (*stiffness*) dari material polimer. Modulus simpan merupakan jumlah energi yang dikembalikan ke dalam sistem secara elastis setelah regangan diberikan. Sedangkan, modulus hilang atau *loss modulus (E")* merupakan indikator energi yang diserap oleh matriks dan tidak dapat dikembalikan secara elastis (Menard, 2008).

Keunggulan dari pengujian DMA ini adalah memungkinkan untuk mendapatkan nilai modulus pada material yang diuji dimana material tersebut mendapatkan gelombang sinus. Seperti dapat dicontohkan apabila pengujian dijalankan dengan frekuensi 1 *Hertz* (Hz) atau dapat diartikan dengan satu siklus per detik, maka nilai modulus dari material yang diuji setiap detiknya dapat direkam, kemudian dianalisis. Pengujian tersebut dapat dilakukan dengan memberikan variasi suhu pada tingkat tertentu seperti pada rentang suhu 5 – 10 ℃ per menit. Dari hasil dari pengujian DMA, maka dapat diperoleh nilai modulus sebagai fungsi temperatur (Menard, 2008).

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

BAB III

METODOLOGI

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui karakterisasi sifat mekanik dari polimer PMMA yang diberi pengisi nano-zirkon. Metode yang diterapkan dalam penelitian adalah pencampuran fasa cair (*liquid).* Metode sintesis *liquid* ini bertujuan agar dapat meningkatkan kehomogenan dari komposit PMMA/nano-zirkon dan tidak terjadi aglomerasi. Tahapan dalam penelitian ini diuraikan menjadi empat tahapan di antaranya (1) ekstraksi dan sintesis nano-zirkon, (2) sintesis komposit PMMA/nano-zirkon menggunakan metode *liquid,* (3) pengujian menggunakan instrumen DMA, dan (4) diagram alir penelitian.

3.1 Ekstraksi dan Sintesis Nano-zirkon

Pasir zirkon yang digunakan dalam sintesis nano-zirkon berasal dari pasir puya Kereng Pangi, Kalimantan Tengah, Indonesia. Selanjutnya pasir puya dicuci dengan akuades berulang kali ±15 kali pencucian, lalu dikeringkan pada suhu ±80 °C selama 12 jam menggunakan oven. Proses tersebut bertujuan untuk menghilangkan pengotor yang tidak diinginkan. Kemudian, pasir diseparasi menggunakan magnet permanen untuk menghilangkan senyawa besi yang terkandung di dalam pasir puya. Separasi magnet dilakukan sampai tidak ada pasir yang menempel pada magnet.

Setelah dilakukan proses separasi magnet, tahap selanjutnya yaitu menghomogenkan ukuran dari pasir puya menggunakan *planetary ball mill* dengan metode penggilingan basah atau *wet milling.* Pada proses *wet milling*, komposisi yang digunakan untuk satu kali penggilingan adalah 30 gram pasir puya, 48 buah bola zirkonia, dan 50 ml alkohol. Proses *wet milling* dilakukan dengan

kecepatan 150 putaran per menit (rpm) selama 2 jam dan jeda waktu 30 menit di setiap jamnya. Setelah proses *wet milling*, maka didapatkan serbuk puya yang masih basah. Serbuk puya tersebut dikeringkan menggunakan *hot plate* atau *stirrer* dengan suhu 80 °C selama ± 2 jam untuk menghilangkan kandungan alkohol yang ada di dalam serbuk. Kemudian, serbuk puya yang sudah kering dihaluskan menggunakan mortar.

Tahapan selanjutnya adalah meningkatkan kemurnian dan menghilangkan senyawa besi yang masih ada di dalam serbuk puya dengan proses *stirring* atau pengadukan. Perbandingan komposisi yang digunakan dalam proses *stirring* ini adalah 1:30 atau dapat didefinisikan untuk 30 gram serbuk puya yang digunakan, diperlukan 900 ml HCl 2 Molar. Proses *stirring* dilakukan dengan mengatur suhu 80 °C dan *stirrer* sebesar 7 mod selama 1 jam. Setelah proses *stirring* selesai dilakukan, lalu serbuk direndam dengan HCl 2 Molar selama 24 jam. Kemudian, endapan serbuk dicuci dengan akuades berulang kali ±15 kali pencucian sampai didapatkan pH netral ±7. Setelah serbuk dinetralkan, serbuk dikeringkan menggunakan *hot plate* dengan suhu ±100 °C selama 3 jam.

Setelah serbuk dikeringkan, dilakukan proses hidrotermal dengan mereaksikan serbuk dan NaOH. Tujuan pereaksian dengan NaOH untuk menghilangkan kuarsa yang masih terkandung di dalam serbuk. Proses hidrotermal dimulai dengan ditambahkan 20 gram serbuk setelah perendaman HCl dan 28 gram NaOH 7 Molar ke dalam 100 ml akuades, lalu diaduk menggunakan *hot plate stirrer* 7 mod pada suhu 300 °C hingga mengerak. Kemudian, sampel diangkat dari *hot plate stirrer* dan ditunggu ±10 menit sampai sampel dingin terlebih dahulu. Setelah itu, sampel yang sudah dingin ditambahkan akuades sebanyak 200 ml, lalu di *stirrer* kembali selama 1 jam menggunakan suhu ruang. Sampel yang

sudah di *stirrer* diangkat dan disaring menggunakan kertas saring. Sampel yang tertinggal atau tidak lolos saring direndam dan didiamkan sampai mengendap selama 24 jam. Setelah sampel didiamkan, dipisahkan antara endapan zirkon dengan larutan natrium silikat ($NaSiO_3$). Endapan zirkon kemudian dicuci berulang kali dengan akuades sampai pHnya netral ±7. Endapan zirkon yang sudah netral dikeringkan menggunakan *hot plate* pada suhu 100 °C selama 3 jam. Kemudian, endapan zirkon yang sudah kering dihaluskan menggunakan mortar dan didapatkan serbuk zirkon murni.

Langkah berikutnya yaitu serbuk zirkon murni diuji menggunakan XRD (*X-ray Powder Diffraction*). Pengujian serbuk zirkon dengan XRD bertujuan untuk mengetahui apakah fasa zirkon sudah terbentuk. Apabila fasa zirkon sudah terbentuk, selanjutnya dilakukan proses *wet milling* kembali. Proses *wet milling* dilakukan kembali untuk menghasilkan serbuk zirkon murni dalam ukuran nano yang akan digunakan sebagai pengisi komposit. Komposisi yang digunakan dalam proses *wet milling* adalah 20 gram serbuk zirkon murni, 48 bola zirkonia dan 167 ml alkohol. Proses penggilingan dilakukan dengan kecepatan 150 putaran per menit (rpm). Setelah proses penggilingan, maka langkah berikutnya dilakukan proses pengeringan menggunakan *hot plate stirrer* pada suhu 80 °C selama 2 jam. Kemudian, serbuk yang sudah kering dihaluskan menggunakan mortar dan diambil 0,5 gram untuk diuji XRD.

Serbuk zirkon yang sudah kering ditandai dengan (TA) atau tanpa anil. Pada penelitian ini, variasi waktu penggilingan yang diberikan yaitu 0, 5 dan 15 jam. Variasi waktu pada proses penggilingan diharapkan nantinya akan terbentuk serbuk zirkon dalam ukuran nano yang ditandai dengan (n-$ZrSiO_4$) sebagai bahan

pengisi komposit. Kemudian, dikarakterisasi kembali menggunakan pengujian XRD, FTIR dan SEM.

3.2 Sintesis Komposit PMMA/Nano-zirkon Menggunakan Metode *Liquid*

Massa total komposit PMMA/nano-zirkon yang akan digunakan di dalam penelitian ini adalah 2,5 gram. Variasi komposisi n-$ZrSiO_4$ sebagai pengisi yang diberikan di antaranya 1; 2,5; dan 5 wt.%. Proses pembuatan komposit PMMA/n-$ZrSiO_4$ diawali dengan dilarutkan polimer PMMA ke dalam aseton, lalu dipanaskan pada suhu 50 °C dengan di *stirrer* 7 mod selama 1 jam. Perbandingan komposisi yang digunakan antara PMMA dan aseton adalah 1:80. Kemudian, ditambahkan SDS atau *Sodium Dodecyl Sulfate* sebanyak 1% (0,025 gram) dan tetap di *stirrer* selama 15 menit. Setelah semua komposisi tercampur, ditambahkan serbuk n-$ZrSiO_4$ dan di *stirrer* kembali selama 30 menit.

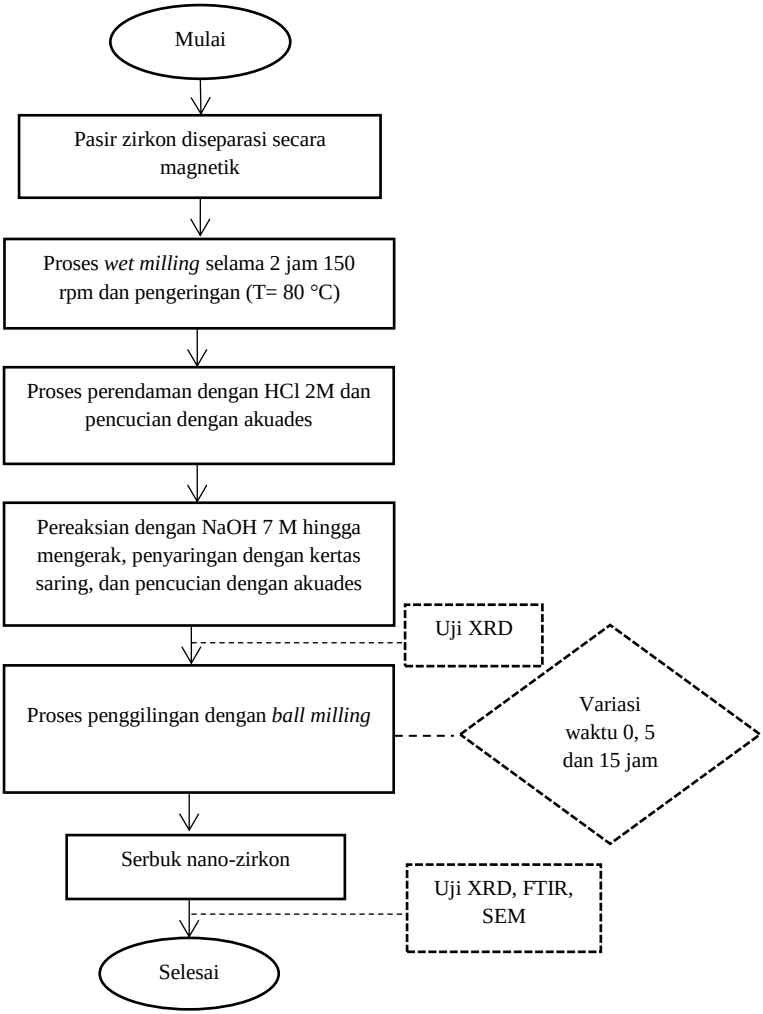
Pada waktu bersamaan dengan proses *stirring*, wadah disiapkan terlebih dahulu untuk mencetak komposit. Cetakan komposit yang disiapkan digunakan yaitu cawan petri. Cawan petri dilapisi dengan *alumunium foil*, lalu diolesi dengan *zinc stearate*. Tujuan diolesi *zinc stearate* agar komposit tidak menempel pada *alumunium foil* saat proses pencetakan. Kemudian, larutan komposit dituangkan ke dalam 2 cawan petri dan dibiarkan sampai aseton mengering. Sehingga didapatkan komposit PMMA/nano-zirkon. Tahap selanjutnya untuk mengetahui komposit PMMA/n-$ZrSiO_4$ berhasil dibuat, seperti pada penelitian sebelumnya oleh Haq (2019) dilakukan karakterisasi menggunakan pengujian XRD dan FTIR. Selain itu, dilakukan karakterisasi SEM EDX untuk mengetahui morfologi awal penyebaran antara PMMA dan nano-zirkon di dalam komposit sebelum dilakukan pengujian DMA.

3.3 Pengujian Menggunakan Instrumen DMA

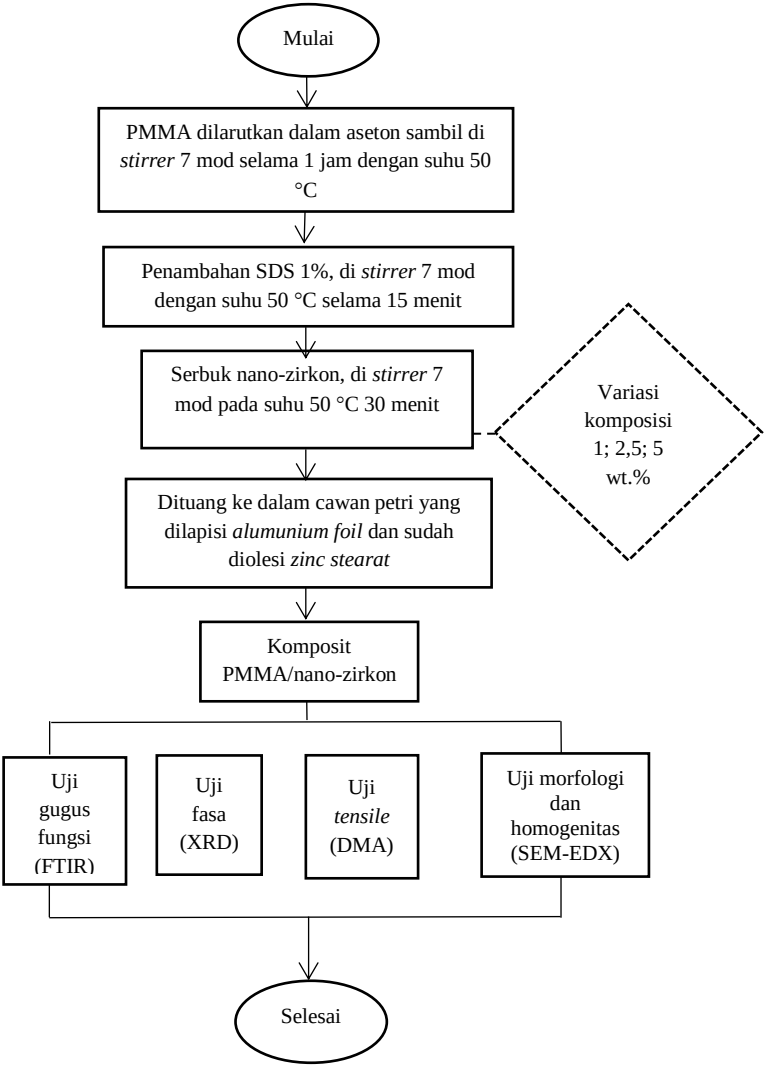
Pengujian komposit PMMA/nano-zirkon dilakukan dengan menggunakan instrumen DMA (*Dynamic Mechanical* Analyzer). Instrumen DMA yang digunakan dalam pengujian adalah Mettler Toledo dengan tipe DMA/SDTA861. Di dalam pengujian komposit PMMA/n-$ZrSiO_4$, mode yang digunakan adalah mode tarik. Di dalam pengujian DMA, diatur frekuensinya sebesar 1 Hz dengan rentang suhu 30 °C sampai 125 °C. Ukuran komposit PMMA/n-$ZrSiO_4$, yang diuji berdimensi 20 mm × 4 mm × 0,5 mm. Tujuan dilakukan pengujian DMA ini untuk memperoleh informasi mengenai sifat termomekanik, sehingga pengaruh banyaknya pengisi atau *filler* nano-zirkon pada nilai modulus tarik komposit dapat diketahui.

3.4 Diagram Alir Penelitian

Berdasarkan tahapan-tahapan yang telah diuraikan, selanjutnya dapat disajikan dalam diagram alir penelitian berikut meliputi sintesis serbuk nano-zirkon pada (Gambar 3.1) dan komposit PMMA/nano-zirkon pada (Gambar 3.2).



Gambar 3.1 Diagram alir sintesis serbuk nano-zirkon.



Gambar 3.2 Diagram alir sintesis serbuk nano-zirkon.

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Sintesis Serbuk Nano-Zirkon

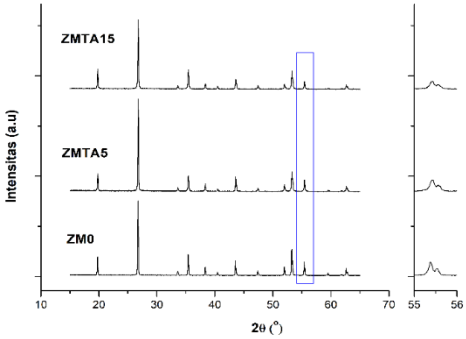
4.1.1 Analisis Pola Difraksi Serbuk Nano-Zirkon

Pola-pola difraksi sinar-X (XRD) serbuk-serbuk nano-zirkon yang telah disintesis ditunjukkan pada Gambar 4.1. Ketiga sampel hasil penggilingan memiliki fasa tunggal zirkon ($ZrSiO_4$) yang sesuai dengan referensi CIF No. 90-5518. Dengan kata lain, variasi waktu penggilingan 5 dan 15 jam tidak mengubah fasa serbuk zirkon awal.

Selanjutnya, analisis *Rietveld* dilakukan dengan menggunakan *software Rietica* dan hasilnya telah memenuhi parameter-parameter kecocokan seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.1, yaitu indeks GoF kurang dari 4%, R_{exp} dan R_{wp} kurang dari 20% sedangkan R_{Bragg} kurang dari 10%. Sementara itu, analisis menunjukkan adanya kenaikan parameter kisi meskipun tidak signifikan (Tabel 4.2). Peningkatan nilai parameter kisi terjadi karena serbuk partikel mengalami tumbukan dengan *ball milling (*bola zirkonia) sehingga membuat serbuk partikel terdeformasi.

Gambar 4.1 juga menunjukkan bahwa variasi waktu penggilingan 0, 5, dan 15 jam mengakibatkan pelebaran puncak XRD. Pelebaran puncak pada ketiga sampel yang digiling tersebut disebabkan oleh dua hal, yaitu perubahan ukuran kristal dan regangan fasa. Tabel 4.3 dan Tabel 4.4 menampilkan ukuran kristal dan regangan hasil luaran *software MAUD.* Ukuran sampel serbuk nano-zirkon semakin kecil dan regangannya semakin besar terhadap waktu penggilingan. Seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.4, ukuran kristal nano-zirkon tanpa penggilingan (ZM0) masih

dalam ukuran sub-mikron (184 nm) lalu tereduksi menjadi berturut-turut 149 nm dan 93 nm setelah 5 dan 15 jam penggilingan. Waktu penggilingan memberikan efek pada ukuran kristal karena adanya gesekan antara *ball milling* dengan serbuk yang digiling. Semakin lama variasi waktu penggilingan, maka energi yang dihasilkan akan semakin besar dan energi yang dihasilkan akan membuat serbuk terdeformasi lalu menjadi hancur. Proses penggilingan tersebut yang membuat serbuk menjadi berukuran nanometrik (Suryanarayana, 2001).



Gambar 4.1 Pola XRD serbuk nano-zirkon tanpa anil 0, 5, dan 15 jam.

Pada Tabel 4.4 menunjukkan bahwa penggilingan juga menginduksi regangan pada sampel serbuk. Regangan pada sampel terjadi karena gesekan pada saat sampel serbuk mengalami tumbukan dengan *ball milling.* Gesekan tersebut akan menyebabkan sampel serbuk memperoleh tegangan dari interaksi antara *ball milling* dengan serbuk.

Tabel 4.1 Parameter Kecocokan Analisis Sampel Serbuk ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan menggunakan *software Rietica*.

Sampel	***GoF***	R_{wp}	R_{exp}	R_{Bragg}
ZM0	1,8	11,2	8,2	4,5
ZMTA5	2,3	12,8	8,4	3,7
ZMTA15	2,2	12,6	8,5	4,4

Tabel 4.2 Komposisi dan Parameter Kisi Fasa Sampel Serbuk Zirkon dengan Variasi Waktu Penggilingan 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil.

Sampel	**Luaran Rietica**			
	Cell Volume **(Å^3)**	**Komposisi (Mol%)**	**Parameter Kisi Zirkon**	
			a=b (Å)	**c (Å)**
ZM0	260,63± 0,01	100	6,6023± 0,0001	5,9793± 0,0005
ZMTA5	261,18± 0,03	100	6,6067± 0,0003	5,9838± 0,0003
ZMTA15	261,34± 0,04	100	6,6084± 0,0035	5,9843± 0,0030

Tabel 4.3 Parameter Kecocokan Analisis Sampel Serbuk ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan menggunakan *software MAUD*.

Sampel	***Sigg***	R_w	R_{wnb}	R_b	R_{exp}
ZM0	2,0	17,3	20,5	13,1	8,5
ZMTA5	2,5	21,4	31,4	19,5	8,4
ZMTA15	1,5	14,1	16,0	10,9	8,5

Tabel 4.4 Ukuran Kristal dan Regangan Serbuk Zirkondengan Variasi Waktu Penggilingan 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil.

Sampel	Ukuran (nm)	Regangan (10^{-4})
ZM0	184 ± 21	0,3 ± 0,1
ZMTA5	149 ± 7	3,3± 0,4
ZMTA15	93 ± 8	4,1 ± 0,5

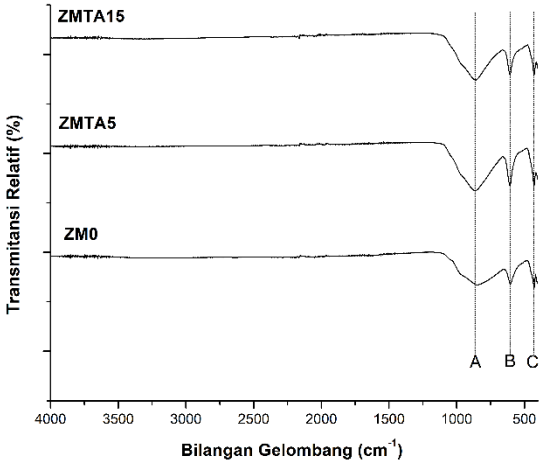
4.1.2 Analisis Pola Spektroskopi FTIR Serbuk Nano-Zirkon

Analisis pola spektroskopi FTIR dilakukan untuk mendukung keberhasilan data XRD mengenai terbentuknya fasa serbuk nano-zirkon. Hasil analisis spektroskopi FTIR memberikan informasi mengenai jenis ikatan gugus fungsi yang terbentuk pada sampel. Gambar 4.2 menunjukkan rentang bilangan gelombang yang digunakan adalah *mid-infrared*, yaitu pada rentang 4000-500 cm^{-1} dan serbuk zirkon berhasil dipertahankan ikatan-ikatannya, ditandai dengan tidak adanya puncak baru.

Pola spektroskopi juga menunjukkan adanya pergeseran bilangan gelombang yang dapat disebabkan oleh terjadinya deformasi dalam molekul atau adanya sekelompok atom yang bergetar maupun berpindah. Deformasi dalam molekul dapat terjadi karena adanya vibrasi *bending* maupun *stretching* pada ikatan antar atom terhadap keadaan idealnya (Stuart, 2004).

Secara kualitatif, analisis pola spektroskopi FTIR dilakukan dengan mencocokkan data hasil bilangan gelombang spektrum inframerah sampel dengan bilangan gelombang spektrum inframerah referensi yang ditampilkan pada Tabel 4.5. Seperti yang terlihat pada Tabel 4.5 bahwa semua sampel menunjukkan adanya puncak karakteristik pada zirkon yang ditunjukkan oleh ikatan Zr-

O *bending*, Si-O *stretching* dan Si-O-Si *bending*. Dari hasil yang ditampilkan pada Tabel 4.5 dapat dikonfirmasikan telah terbentuknya serbuk nano-zirkon.



Gambar 4.2 Spektrum FTIR serbuk nano-zirkon giling 0, 5, dan 15 jam tanpa anil.

Tabel 4.5 Perbandingan Bilangan gelombang Puncak Spektrum FTIR antara Referensi dengan Serbuk Nano-zirkon Giling 0, 5, dan 15 Jam Tanpa Anil.

Jenis Ikatan		**Bilangan Gelombang (cm^{-1})**			
		Referensi*	**ZM0**	**ZMTA5**	**ZMTA15**
A	*Zr-O bending*	800-1130	849,9	861,3	857,3
B	*Si-O streching*	950-500	604,5	607,9	606,8
C	*Si-O-Si bending*	500 - 200	429	429,5	429

*(Stuart, 2004; Li dkk., 2013)

4.1.3 Analisis Citra SEM Serbuk Nano-Zirkon

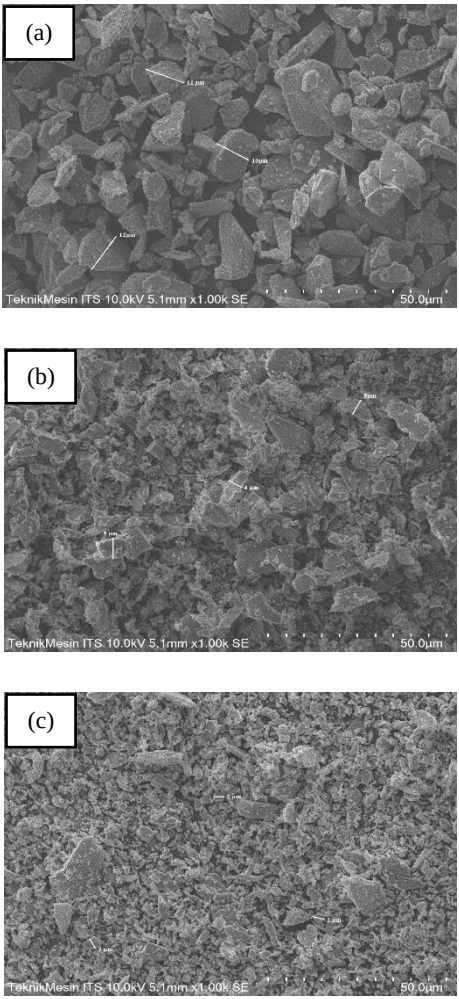
Analisis citra SEM dilakukan untuk mengetahui morfologi butir serbuk nano-zirkon yang terbentuk. Selain itu, hasil analisis citra SEM pada serbuk nano-zirkon digunakan untuk mendukung keberhasilan data XRD. Pada Gambar 4.3 perbesaran yang digunakan untuk analisis citra SEM ketiga sampel (ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15) adalah 1000 kali. Seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 4.3 terlihat bahwa variasi waktu penggilingan menyebabkan berubahnya ukuran butir serbuk.

Morfologi butir serbuk nano-zirkon dengan variasi 0, 5, dan 15 jam dapat dilihat pada Gambar 4.3, dengan ukuran secara berturut-turut diperkirakan sebesar 11, 5, dan 2 μm. Representasi dari ketiga sampel secara kualitatif menunjukkan bahwa semakin lama waktu penggilingan, ukuran butir serbuk nano-zirkon semakin kecil (ZMTA15) hingga seperlima kali dari ukuran butir sebelum digiling (ZM0).

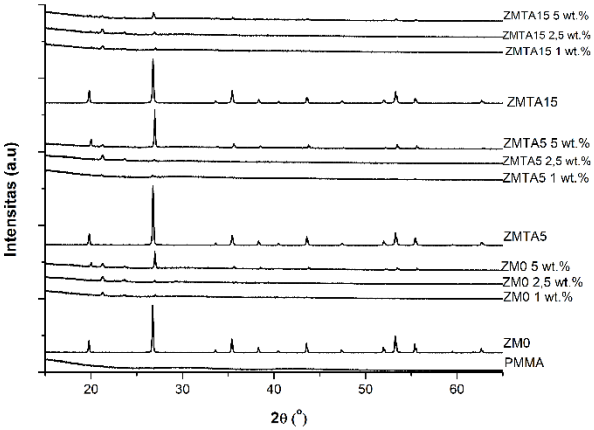
4.2 Sintesis Komposit PMMA/Nano-Zirkon

4.2.1 Analisis Pola Difraksi Komposit PMMA/Nano-Zirkon

Pola-pola XRD sampel-sampel komposit PMMA/nano-zirkon yang dapat dilihat pada Gambar 4.4 dan 4.5 tidak menunjukkan adanya puncak baru, melainkan hanya berasal dari PMMA dan nano-zirkon. Tidak adanya puncak baru mengindikasikan keberhasilan sintesis komposit. Keberhasilan komposit PMMA/nano-zirkon dapat dikonfirmasi dari penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Haq (2019) mengenai komposit PMMA/n-Z dan Sari (2020) tentang komposit PMMA/nano-kuarsa, yang menunjukkan tidak adanya puncak baru di dalam kompositnya.



Gambar 4.3 Citra SEM serbuk nano-zirkon (a) ZM0;
(b) ZMTA5; dan (c) ZMTA15.



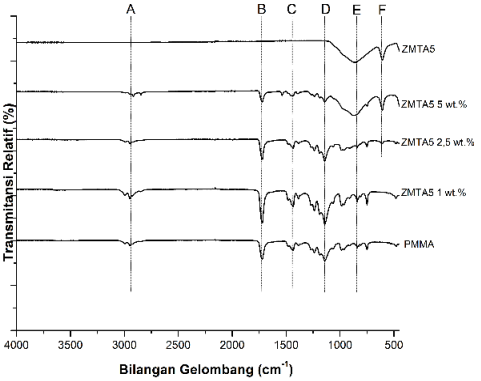
Gambar 4.4 Pola Difraksi PMMA, nano-zirkon dan komposit PMMA/nano-zirkon giling 0, 5, dan 15 jam tanpa anil.

4.2.2 Analisis Pola Spektroskopi FTIR Komposit PMMA/Nano-Zirkon

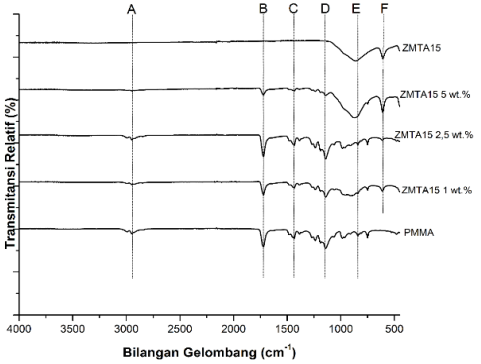
Terlihat pada Gambar 4.6 dan 4.7 bahwa komposit PMMA/nano-zirkon berhasil terbentuk karena tidak adanya puncak spektrum FTIR baru. Puncak-puncak komposit yang terbentuk hanya perpaduan antara puncak PMMA dan zirkon.

Analisis pola spektroskopi FTIR dapat dilakukan secara kualitatif, yaitu dengan cara mencocokkan bilangan gelombang antara spektrum inframerah referensi dan spektrum inframerah dari sampel komposit seperti yang ditampilkan pada Tabel 4.6 dan 4.7. Semua sampel komposit menunjukkan adanya ikatan PMMA yang ditunjukkan pada ikatan -OH *stretching*, C=C *stretching* dan C-O-C *stretching*. Sedangkan, keberadaan zirkon ditunjukkan dengan

ikatan Zr-O *bending* dan Si-O-Si *stretching*. Keberhasilan komposit PMMA/nano-zirkon juga dikonfirmasi dari penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Sari (2020) mengenai komposit PMMA/nano-kuarsa dan Haq (2019) berhasil meneliti komposit PMMA/n-Z.



Gambar 4.5 Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5.



Gambar 4.6 Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15.

Tabel 4.6 Perbandingan Bilangan gelombang Puncak Spektrum FTIR antara Referensi dengan Komposit PMMA/nano-zirkon.

	Jenis Ikatan	Bilangan Gelombang (cm^{-1})	
		Referensi*	Komposit PMMA/nano-zirkon
A	*O-H stretching*	3750-2500	2949
B	*C=C stretching*	1650-1900	1721
C	*C-O-C sretching*	1500-800	1434
D	*C-O-C sretching*	1500-800	1142
E	*Zr-O bending*	800-1130	985
F	*Si-O streching*	950-500	749

*(Stuart, 2004; Li dkk., 2013)

4.2.3 Analisis Citra SEM dan SEM-EDX Komposit PMMA/Nano-Zirkon

Analisis citra SEM dilakukan untuk memperkirakan adanya penguatan karena penambahaan nano-zirkon sebagai pengisi. Gambar 4.8 dan 4.9 menunjukkan representasi citra SEM komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 dan ZMTA5 masing-masing dengan komposisi 1 wt.% dan 2,5 wt.%. Seperti yang terlihat pada Gambar 4.9, permukaan sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 tidak rata apabila dibandingkan dengan sampel PMMA/nano-zirkon ZM0 (Gambar 4.8). Akan tetapi, analisis citra SEM saja tidak cukup sehingga perlu dilakukan analisis dispersi dengan pemetaan SEM EDX untuk mengetahui sebaran nano-zirkon di dalam matriks polimer PMMA.

Homogenitas sebaran nano-zirkon pada sampel komposit PMMA/nano-zirkon dapat diketahui menggunakan SEM/EDX melalui pendekatan kualitatif dan kuantitatif. Secara kualitatif,

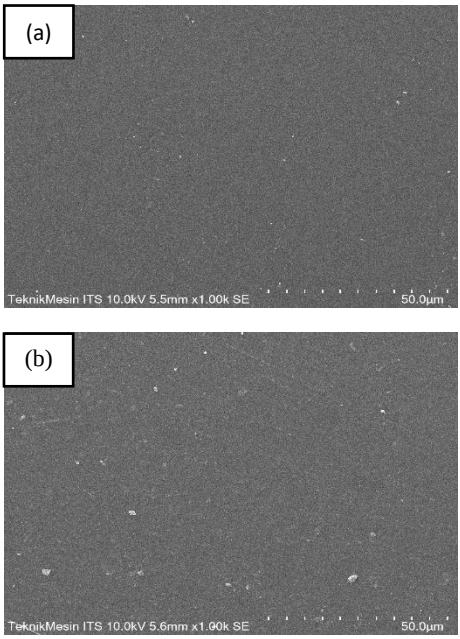
dapat dilakukan dengan melihat sebaran nano-zirkon seperti yang ditunjukkan pada gambar citra SEM/EDX (Gambar 4.10-4.13(a)). Pada citra SEM/EDX ini, piksel yang berwarna merah mewakili unsur Si di dalam komposit PMMA/nano-zirkon sehingga unsur Si tersebut dapat mewakili sebaran zirkon ($ZrSiO_4$) di dalam matriks polimer PMMA. Warna merah yang merata pada daerah sampel menunjukkan bahwa sampel tersebut memiliki tingkat homogenitas yang cukup tinggi. Sebaliknya, apabila terdapat warna merah yang lebih terang di titik tertentu, maka keadaan tersebut mengindikasikan bahwa sampel tersebut memiliki tingkat homogenitas pengisi yang rendah dan zirkon mengalami aglomerasi.

Selanjutnya, dapat dilakukan pendekatan secara kuantitatif dengan mencari standar deviasi dari data intensitas warna yang sudah diperoleh (piksel berwarna merah) dari perangkat lunak *PixelProfile*. Nilai standar deviasi yang tinggi dapat dimiliki oleh sampel dengan penyimpangan intensitas yang cukup banyak. Analisis indeks disperbilitas ($I_{disperbilitas}$) dapat dilakukan dengan menggunakan Persamaan 4.1 (Kim dkk., 2017).

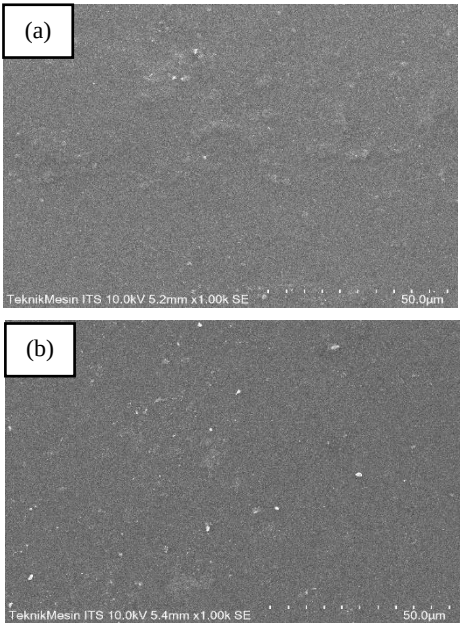
$$I_{dispersibilitas} = \frac{S_{intensitas}}{\bar{x}_{intensitas}} \quad \text{.....(4.1)}$$

Nilai $I_{dispersibilitas}$ merupakan indeks dispersibilitas yang menggambarkan tingkat kehomogenan sebaran pengisi komposit, $S_{intensitas}$ mewakili standar deviasi intensitas, sedangkan $\bar{x}_{intensitas}$ mewakili rata-rata intensitas pengisi. Semakin kecil nilai $I_{dispersibilitas,}$ maka sebaran pengisi semakin homogen, begitu juga sebaliknya. Seperti yang terlihat pada Tabel 4.7, pada sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 menunjukkan bahwa nilai $I_{dispersibilitas,}$ semakin kecil seiring dengan penambahan komposisi pengisinya. Seperti yang terlihat pada Tabel 4.7 hasil perhitungan $I_{dispersibilitas}$, sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 dan

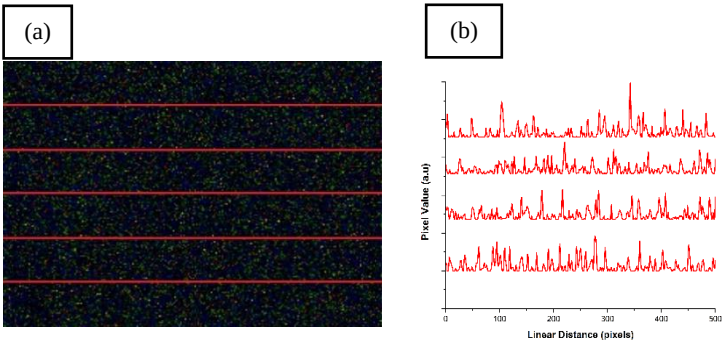
ZMTA15 menunjukkan kenaikan nilai $I_{dispersibilitas}$. Maka dapat diperoleh informasi bahwa tingkat homogenitas kedua sampel menurun (ZMTA5 dan ZMTA15). Penurunan tingkat homogenitas pada kedua sampel tersebut diindikasi bahwa nano-zirkon mengalami aglomerasi di beberapa titik. Persebaran pengisi yang cenderung menyebar secara merata dan berkumpul di beberapa daerah tertentu disebabkan karena zirkon sebagai pengisi berukuran nanometrik. Hasil perhitungan $I_{dispersibilitas}$ mengkonfirmasi hasil SEM sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 dan ZMTA15 sebelumnya, yang menunjukkan adanya aglomerasi dan sangat mempengaruhi sebaran partikel zirkon di dalam komposit.



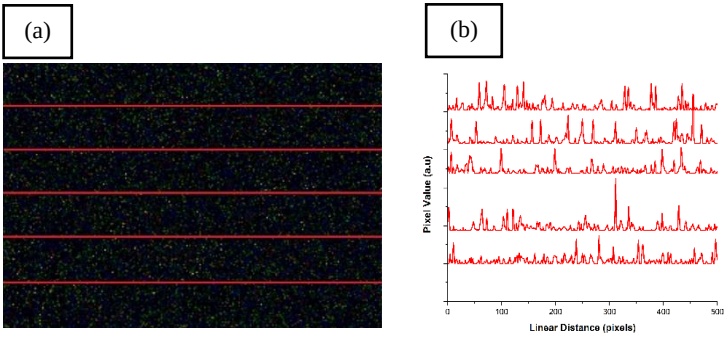
Gambar 4.7 Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon (a) ZM0 1 wt.% dan (b) ZM0 2,5 wt.%.



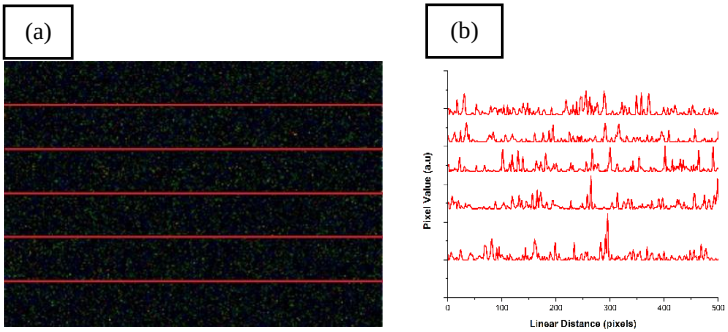
Gambar 4.8 Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon (a) ZMTA5 1 wt.% dan (b) ZMTA5 2,5 wt.%.



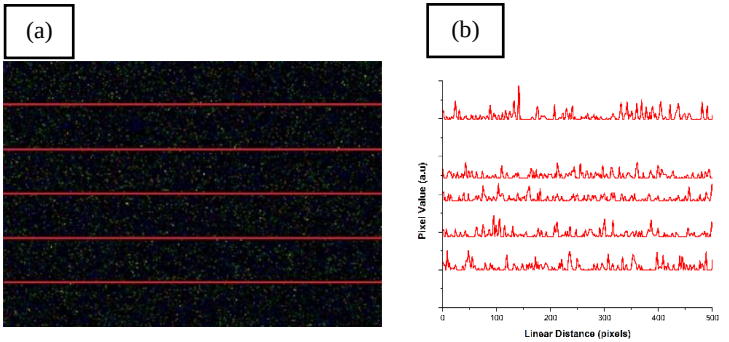
Gambar 4.9 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 1 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 4.10 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 4.11 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 1 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 4.12 Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*

Tabel 4.7 Nilai $I_{dispersibilitas}$ Sampel Komposit PMMA/Nano-zirkon ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 dengan Variasi Komposisi Pengisi.

Pengisi	$I_{dispersibilitas}$		
	1 wt.%	**2,5 wt.%**	**5 wt.%**
ZM0	1,35	0,77	0,41
ZMTA5	0,32	0,71	1,36
ZMTA15	1,21	1,38	1,41

4.3 Hasil Uji DMA Komposit PMMA/Nano-Zirkon

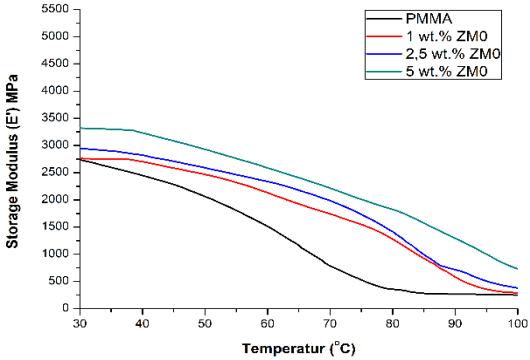
Lebih lanjut dilakukan analisis dengan menggunakan instrumentasi DMA (*Dynamic Mechanical Analyzer*) untuk menentukan nilai modulus tarik/modulus simpan (*E'*) selama terjadi kenaikan suhu dan menentukan nilai temperatur transisi gelas (T_g) polimer dalam komposit. Seperti pada Gambar 4.14-4.16 yang memperlihatkan plot dari modulus simpan (*E'*), dapat diketahui bahwa komposit PMMA/nano-zirkon dengan pengisi ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15 mengalami peningkatan nilai modulus simpan seiring dengan pertambahan komposisi nano-zirkon. Hal ini dapat diamati dengan plot modulus simpan pada PMMA yang sudah dikompositkan lebih tinggi apabila dibandingkan dengan PMMA murni.

Nilai modulus simpan untuk semua sampel komposit PMMA/nano-zirkon pada temperatur ruang (30 °C) disajikan lebih detil pada Tabel 4.8. Nilai modulus simpan mengalami peningkatan seiring dengan penambahan nano-zirkon. Peningkatan ini terjadi karena nano-zirkon menghambat kebebasan gerak dari rantai gugus polimer. Selain itu, nilai modulus simpan dapat mengalami peningkatan seiring dengan penambahan zirkon lebih

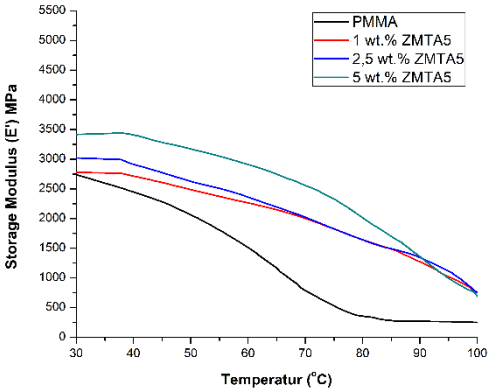
kecil ukurannya. Ukuran zirkon yang semakin kecil membuat luas spesifiknya bertambah sehingga akan meningkatkan mekanisme ikatan antara PMMA dan nano-zirkon.

Tabel 4.8 Nilai Modulus Simpan (*E'*) Komposit PMMA/Nano-zirkon ZM0, ZMTA5 dan ZMTA15.

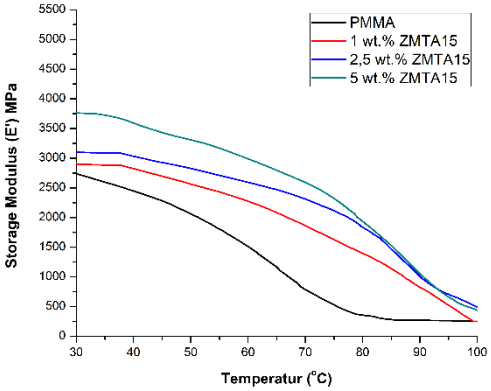
Pengisi	***E'* (MPa)**			
	0 wt.%	**1 wt.%**	**2,5 wt.%**	**5 wt.%**
ZM0	2734	2759	2946	3319
ZMTA5	2734	2782	3006	3542
ZMTA15	2734	2897	3098	3761



Gambar 4.13 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZM0.

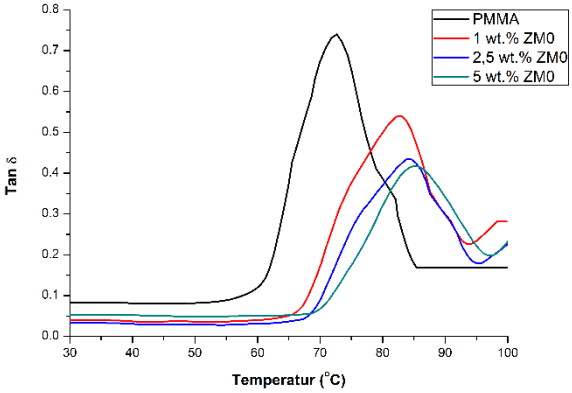


Gambar 4.14 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5.

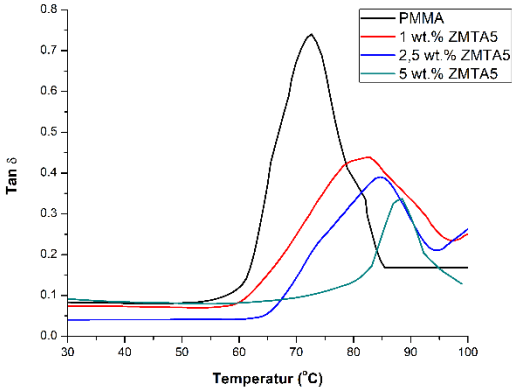


Gambar 4.15 Plot modulus simpan (*E'*) komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15.

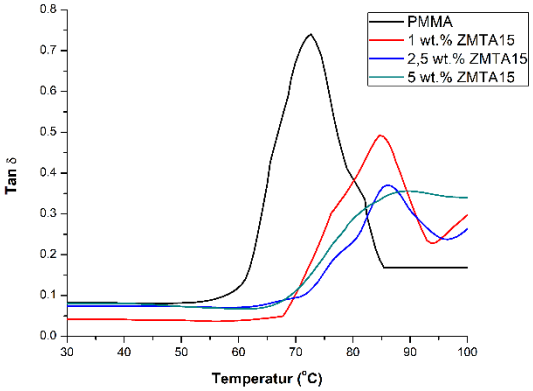
Ketika memasuki daerah transisi pada rentang temperatur 60 °C - 80 °C terjadi penurunan plot modulus simpan. Penurunan plot modulus simpan dapat terjadi karena adanya peningkatan temperatur sehingga menyebabkan *free volume* pada rantai segmen polimer mengalami peningkatan. *Free volume* dapat didefinisikan sebagai ruang suatu molekul untuk melakukan gerak internal. Pergerakan bebas rantai polimer menyebabkan regangan antar molekulnya meningkat dan mengakibatkan nilai modulus simpannya menurun hingga mencapai temperatur transisi gelas (T_g). Temperatur transisi gelas mempresentasikan transisi *glassy* ke *rubbery* dari polimer. Namun, seperti yang terlihat pada plot modulus simpan untuk ketiga sampel komposit PMMA/nano-zirkon, penurunannya pada daerah transisi tidak signifikan. Hal ini diduga akibat kurang homogennya persebaran nano-zirkon seperti yang sebelumnya ditunjukkan oleh indeks disperbilitas pada Tabel 4.7.



Gambar 4.16 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZM0.



Gambar 4.17 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5.



Gambar 4.18 Plot tan δ komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15.

Tabel 4.9 T_g komposit PMMA/nano-zirkon ZM0, ZMTA5 dan ZMTA15.

Waktu Penggilingan (Jam)	**T_g (°C)**			
	0 wt.%	**1 wt.%**	**2,5 wt.%**	**5 wt.%**
0	73	82	84	86
5	73	83	85	88
15	73	85	86	89

Tabel 4.9 menunjukkan nilai temperatur gelas yang semakin meningkat seiring dengan penambahan nano-zirkon sebagai pengisi dalam komposit. Nilai temperatur gelas yang semakin meningkat terjadi karena keberadaan partikel nano-zirkon sebagai pengisi komposit menyerap sebagian energi sehingga nilai temperatur gelasnya (T_g) bergeser menjadi semakin tinggi. Nilai temperatur gelas (T_g) diperoleh dari plot *tanδ* seperti yang terlihat pada Gambar 4.17-4.19. Kenaikan T_g berhubungan dengan meningkatnya interaksi antara PMMA dan nano-zirkon di dalam komposit. Plot *tanδ* menunjukkan adanya peningkatan luasan di bawah puncak *tanδ* dari komposit PMMA/nano-zirkon apabila dibandingkan dengan PMMA murni. Perluasan puncak *tanδ* menginformasikan adanya penghambatan pada peristiwa relaksasi dari rantai polimer. Peristiwa relaksasi terhambat oleh interaksi antara matriks dan zirkon sebagai pengisi (Ramdani dkk., 2014; Fauziyah, 2015).

Pada daerah *rubbery*, nilai modulus simpan mencapai nilai minimum dikarenakan sampel komposit mengalami deformasi sepenuhnya. Seperti yang terlihat pada plot modulus simpan ketiga sampel komposit PMMA/nano-zirkon, daerah *rubbery* tidak terlalu

terlihat akibat rentang temperatur yang kurang tinggi menyebabkan daerah *rubbery* tidak terlalu teramati. Sehingga, untuk pengujian berikutnya dapat menggunakan rentang temperatur yang lebih tinggi agar daerah *rubbery* dapat terlihat jelas.

4.4 Analisis Sifat Optik Komposit PMMA/Nano-Zirkon

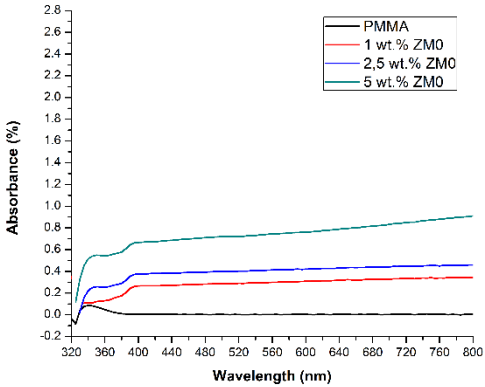
Hasil pengujian UV-Vis ketiga sampel (ZM0, ZMTA5, dan ZMTA15) ditampilkan dalam bentuk plot seperti pada Gambar 4.20, 4.21, dan 4.22. Berdasarkan plot ketiga sampel komposit PMMA/nano-zirkon tersebut diperoleh informasi bahwa komposisi zirkon dapat mempengaruhi nilai absorbansi pada sampel. Komposit dengan komposisi zirkon 1 wt.% menunjukkan nilai absorbansi terendah dan komposisi zirkon 5 wt.% menunjukkan nilai absorbansi tertinggi. Nilai absorbansi semakin meningkat seiring dengan penambahan komposisi nano-zirkon yang diberikan. Sehingga dapat dikatakan bahwa molekul-molekul pada nano-zirkon berpengaruh dalam penyerapan radiasi UV-Vis dan konsentrasi nano-zirkon yang tinggi dapat meningkatkan nilai absorbansi pada sampel komposit.

Rentang panjang gelombang UV (*Ultra Violet*) adalah 100-400 nm dan rentang gelombang *visible* adalah 400-1000 nm. Berdasarkan rentang panjang gelombangnya, sinar UV (*Ultra Violet*) dibagi menjadi tiga jenis. UV-A berada pada rentang panjang gelombang 320-400 nm, UV-B pada rentang 280-320 nm dan UV-C pada rentang 200-280 nm (Kneissl dkk., 2010). Seperti yang terlihat pada plot nilai absorbansi, sampel dalam rentang panjang gelombang 320 nm hingga 800 nm. Nilai absorbansi maksimum komposit PMMA/nano-zirkon yaitu pada rentang panjang gelombang 320-380 nm, sehingga dapat diartikan bahwa absorbansi komposit PMMA/nano-zirkon berada di daerah UV-A.

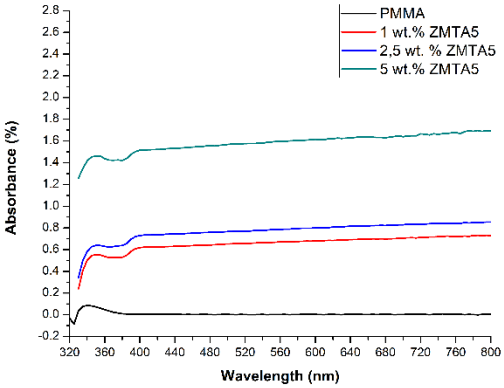
Pada sifat ini, molekul-molekul nano-zirkon berperan dalam

penyerapan radiasi UV-Vis. Konsentrasi pada nano-zirkon yang tinggi meningkatkan nilai serapan komposit. Hal ini sesuai dengan bunyi Hukum Lambert-Beer, yaitu bahwa nilai absorbansi berbanding lurus dengan konsentrasi yang sesuai dengan persamaan:

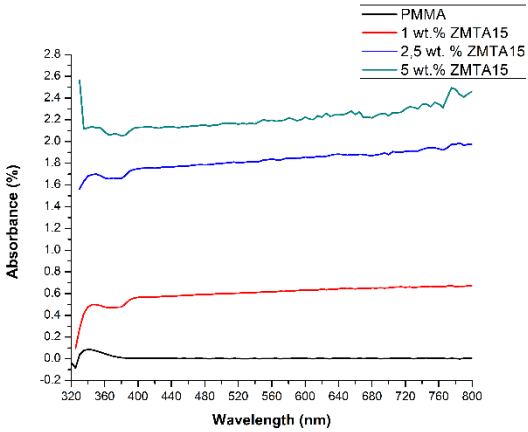
$$A = \mathcal{E}bC \quad \ldots\ldots\ldots\



Gambar 4.19 Absorbansi komposit PMMA/nano-zirkon ZM0.



Gambar 4.20 Absorbansi komposit PMMA/ nano-zirkon ZMTA5.



Gambar 4.21 Absorbansi komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Kesimpulan dari penelitian yang telah dilakukan adalah sebagai berikut.

1. Ukuran kristal zirkon semakin kecil seiring dengan bertambahnya waktu penggilingan, yaitu masih berskala sub-mikron (184 nm) pada sampel tanpa penggilingan, kemudian menjadi kristal berukuran nanometrik yaitu berturut-turut 149 nm dan 93 nm. Penggilingan juga cenderung meningkatkan regangan sisa.
2. Sintesis komposit PMMA/nano-zirkon dengan serbuk zirkon berukuran nanometrik sebagai pengisi berhasil dilakukan menggunakan metode *wet milling* dengan variasi komposisi sebesar 1 wt.%; 2,5 wt.%; dan 5 wt.%
3. Variasi ukuran dan komposisi zirkon sebagai pengisi berpengaruh terhadap:
   a. Modulus simpan, yaitu bahwa semakin kecil ukuran zirkon dan semakin tinggi jumlah pengisi zirkon yang digunakan, maka modulus simpan semakin meningkat.
   b. Temperatur transisi gelas (T_g), meningkat seiring dengan penambahan nano-zirkon sebagai pengisi.
4. Nilai absorbansi maksimum komposit ada pada rentang 320 nm - 380 nm (termasuk rentang UVA) yang menunjukkan potensi komposit sebagai material pelapis untuk melindungi material lain dari degradasi akibat paparan UV-A.

5.2 Saran

Penulis menyadari bahwa laporan Tugas Akhir ini masih memiliki banyak kekurangan. Oleh karena itu, saran yang dapat penulis sampaikan untuk penelitian di masa depan adalah sebagai berikut:

1. Dari hasil SEM/EDX pada sampel komposit PMMA/nano-zirkon terlihat bahwa zirkon masih cenderung beraglomerasi sehingga perlu dikaji lebih lanjut mengenai modifikasi zirkon agar dapat terdistribusi secara merata pada matriks.
2. Dari hasil DMA pada sampel komposit terlihat bahwa pada daerah *rubbery* tidak terlalu terlihat sehingga untuk pengujian selanjutnya dapat menggunakan rentang temperatur yang lebih tinggi.

DAFTAR PUSTAKA

Badawi, A., 2015. Characterization of the optical and mechanical properties of CdSe QDs/PMMA nanocomposite films. J. Mater. Sci. Mater. Electron. 26, 3450–3457.

Barszczewska-Rybarek, I.M., Korytkowska-Wałach, A., Kurcok, M., Chladek, G., Kasperski, J., 2017. DMA analysis of the structure of crosslinked poly(methyl methacrylate)s. Acta Bioeng. Biomech. 012017 ISSN 1509-409X.

Brook, R.J., 2012. Concise Encyclopedia of Advanced Ceramic Materials. Elsevier.

Capeillère, J., Toutant, A., Olalde, G., Boubault, A., 2014. Thermomechanical behavior of a plate ceramic solar receiver irradiated by concentrated sunlight. Sol. Energy 110, 174–187.

Chitraningrum, N., 2008. Sifat Mekanik dan Termal pada Bahan Nano-komposit Epoxy-Clay Tapanuli. Universitas Indonesia, Departemen Fisika, Depok.

Dutta, T., Barman, A., Majumdar, G., 2019. Green and sustainable manufacturing of metallic, ceramic and composite materials.

Elsner, H., 2013. Zircon-Insufficient Supply in the Future? Deutsche Rohstoffagentur (DERA) in der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe.

Fadly, T.A., 2016. Evaluasi Sifat Termomekanik Pada Komposit PEG 400/SiO2 (Kuarsa dan Amorf) dengan Dynamic Mechanical Analysis (DMA). Institute Of Technoloy Sepuluh Nopember Surabaya, Surabaya Indonesia.

Fauziyah, N.A., 2015. Karakterisasi komposit PEG 4000/SiO2 (SiO2 = kuarsa, amorf, kristobalit) dengan dynamic mechanical analyser (DMA). Institute Of Technoloy

Sepuluh Nopember Surabaya, Surabaya Indonesia.

Finch, R.J., Hanchar, J.M., n.d. Structure and Chemistry of Zircon and Zircon-Group Minerals 25.

Gao, X., Jiang, Z., Wei, D., Kosasih, B., 2015. Effect of thermomechanical treatment on sliding wear of high-Cr cast iron with large plastic deformation. Tribol. Int. 92, 117–125.

Haq, R.M., 2019. Analisis Modulus Tarik Komposit PMMA/n-Z menggunakan *Dynamic Mechanical Analyzer (DMA)*. Institute Of Technoloy Sepuluh Nopember Surabaya, Surabaya Indonesia.

Hildayati, 2009. Sintesis dan Karakterisasi Bahan Komposit Karet Alam-Silika. Semin. Nas. Pascasarj. IX – ITS.

Hilmi, A.R., 2016. SIfat Termomekanik komposit PEG4000/SiO2 amorf mengunakan Dynamic Mechanical Analyzer (DMA) dengan variasi frekuensi. Institute Of Technoloy Sepuluh Nopember Surabaya, Surabaya Indonesia.

Keskin, S.B., Sahmaran, M., Yaman, I.O., Lachemi, M., 2014. Correlation between the viscoelastic properties and cracking potential of engineered cementitious composites. Constr. Build. Mater. 71, 375–383.

Liu, H., Liu, D., Yao, F., Wu, Q., 2010. Fabrication and properties of transparent polymethylmethacrylate/cellulose nanocrystals composites. Bioresour. Technol. 101, 5685–5692.

Love, C.T., 2011. Thermomechanical analysis and durability of commercial micro-porous polymer Li-ion battery separators. J. Power Sources 196, 2905–2912.

Mark, J.E., 1999. Polymer data handbook. Oxford University Press, New York.

Menard, K., 2008. Dynamic Mechanical Analysis: A Practical

Introduction. CRC Press.

Mikrianto, E., Yunus, R., Wahyuliani, G., Qomariah, N., Amin, R., 2018. Ekstraksi Zirkon (ZrO2) dari Pasir Zirkon Katingan Sebagai Prekursor Sintesis Oksida Pirovskit SrZrO3 3, 7.

Mittal, V., 2012. Functional Polymer Blends: Synthesis, Properties, and Performance. CRC Press.

Musyarofah, Lestari, N.D., Nurlaila, R., Muwwaqor, N.F., Triwikantoro, Pratapa, S., 2019. Synthesis of high-purity zircon, zirconia, and silica nanopowders from local zircon sand. Ceram. Int. 45, 6639–6647.

Nussbaumer, R.J., Caseri, W.R., Smith, P., Tervoort, T., 2003. Polymer-TiO2 Nanocomposites: A Route Towards Visually Transparent Broadband UV Filters and High Refractive Index Materials. Macromol. Mater. Eng. 288, 44–49.

Otsuka, H., Muta, T., Sakada, M., Maeda, T., Takahara, A., 2009. Scrambling reaction between polymers prepared by step-growth and chain-growth polymerizations: macromolecular cross-metathesis between 1,4-polybutadiene and olefin-containing polyester. Chem. Commun. 1073.

Padeste, C., Neuhaus, S., 2015. Polymer Micro- and Nanografting. William Andrew.

Parcianello, G., Bernardo, E., Colombo, P., 2012. Low temperature synthesis of zircon from silicone resins and oxide nano-sized particles. J. Eur. Ceram. Soc. 32, 2819–2824.

Patidar, D., Agrawal, S., Saxena, N.S., 2011. Storage modulus and glass transition behaviour of CdS/PMMA nanocomposites. J. Exp. Nanosci. 6, 441–449.

Poomalai, P., Varghese, T.O., 2011. Thermomechanical Behaviour of Poly(methyl methacrylate)/Copoly(ether-ester) Blends.

ISRN Mater. Sci. 2011, 1–5.

Puthenkovilakam, R., Carter, E.A., Chang, J.P., 2004. First-principles exploration of alternative gate dielectrics: Electronic structure of ZrO 2 /Si and ZrSiO 4 /Si interfaces. Phys. Rev. B 69, 155329.

Rijal, A., Nuryadin, B.W., Abdullah, M., 2008. Fabrikasi Material Nano-komposit Superkuat, Ringan dan Transparan Menggunakan Metode Simple Mixing 1, 9.

Sari, A.I., 2020. Karakterisasi Sifat Optik dan Termomekanik Komposit PMMA/Nano-kuarsa. Institute Of Technoloy Sepuluh Nopember Surabaya, Surabaya Indonesia.

Srikanth, S., Devi, V.L., Kumar, R., 2015. Unfolding the complexities of mechanical activation assisted alkali leaching of zircon (ZrSiO4) 12.

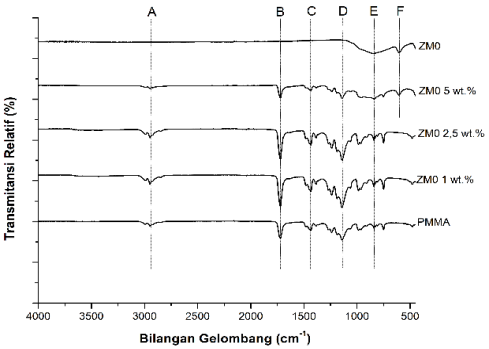
Tang, E., Cheng, G., Ma, X., 2006. Preparation of nano-ZnO/PMMA composite particles via grafting of the copolymer onto the surface of zinc oxide nanoparticles. Powder Technol. 161, 209–214.

Yang, X., Hu, Y., Bai, H., Feng, M., Yan, Z., Cao, S., Yang, B., 2018. Tuning of oxygen species and active Pd2+ species of supported catalysts via morphology and Mn doping in oxidative carbonylation of phenol. Mol. Catal. 457, 1–7.

LAMPIRAN A

Hasil Analisis Data XRD dan FTIR

Komposit PMMA/Nano-zirkon

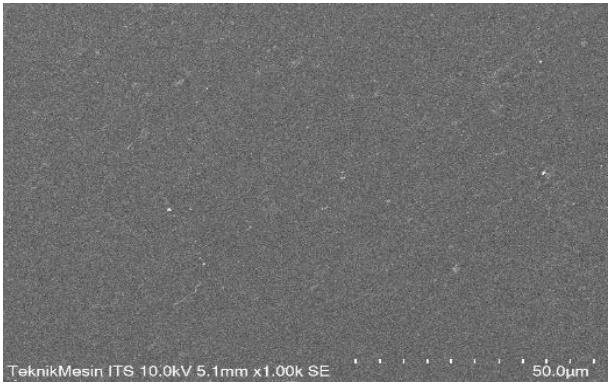


Gambar 1. Pola FTIR sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZM0.

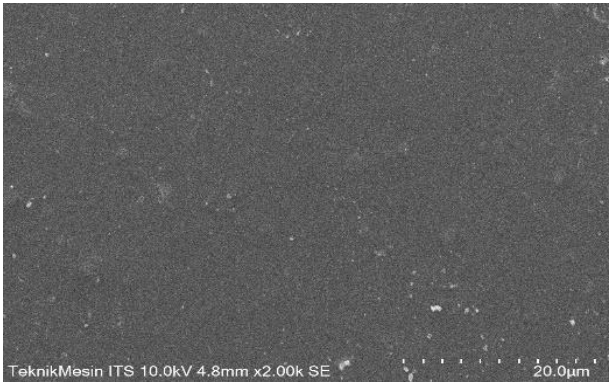
"Halaman ini sengaja dikosongkan"

LAMPIRAN B

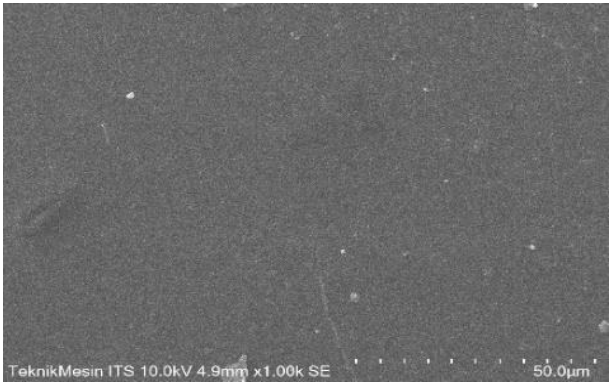
Hasil Analisis Data SEM dan SEM/EDX



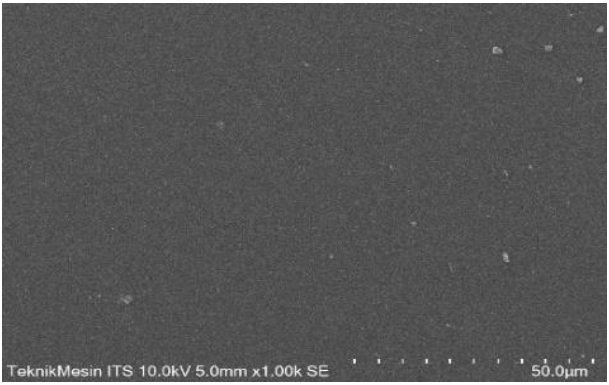
Gambar 2. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZM0 5 wt.%.



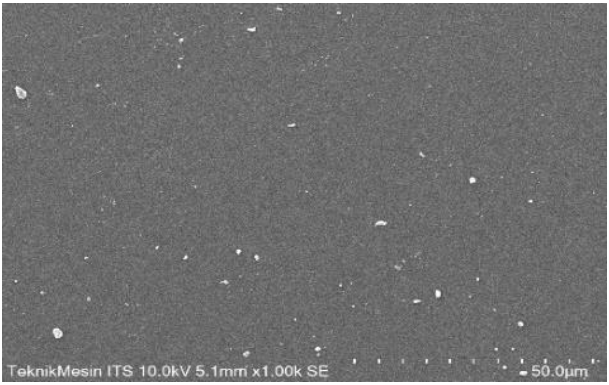
Gambar 3. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA5 5 wt.%.



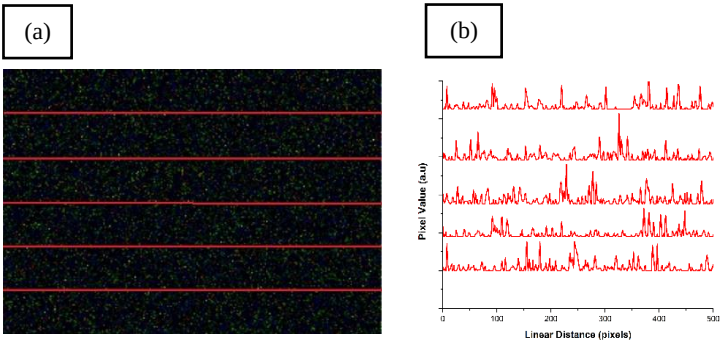
Gambar 4. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 1 wt.%.



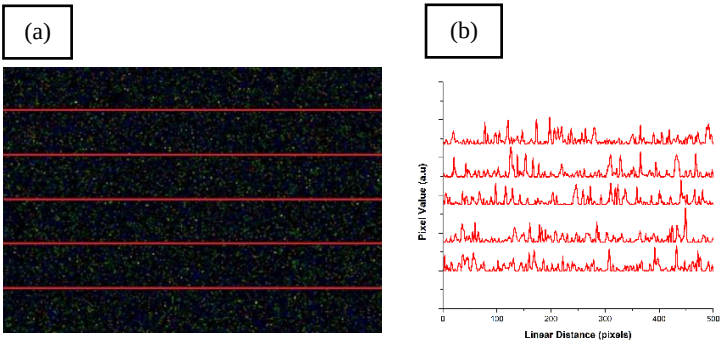
Gambar 5. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 2,5 wt.%.



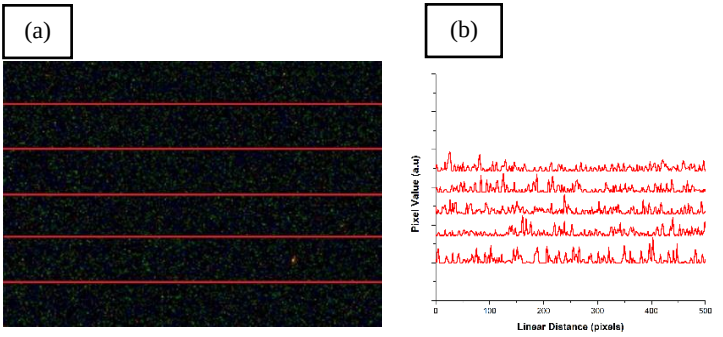
Gambar 6. Representasi morfologi sampel komposit PMMA/nano-zirkon ZMTA15 5 wt.%.



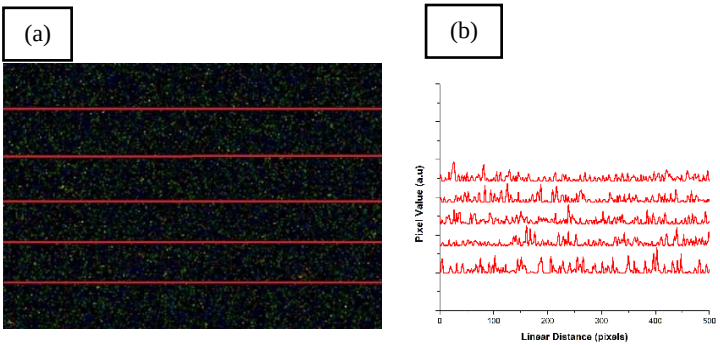
Gambar 7. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZM0 5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



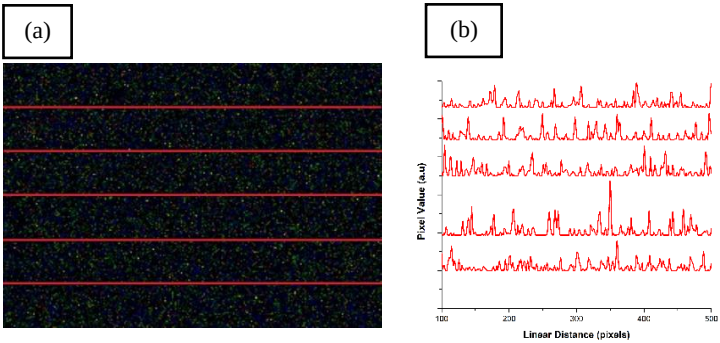
Gambar 8. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA5 5wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 9. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 1wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 10. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 2,5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*



Gambar 11. Homogenitas sebaran PMMA/nano-zirkon ZMTA15 5 wt.% (a) menggunakan SEM-EDX, (b) Hasil analisis menggunakan perangkat lunak *Pixel Profile.*

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

BIODATA PENULIS

Penulis yang memiliki nama Wiwit Wulandari atau biasa dipanggil dengan Wiwit, lahir di Magetan pada tanggal 13 Maret 1998. Penulis merupakan anak pertama dari pasangan Bapak Marjikin dan Ibu Sri Wahyuningsih. Penulis memiliki dua orang adik yang bernama Annisa dan Dinda. Pendidikan formal yang telah ditempuh oleh penulis, yaitu TK Islam Jiwa Nala (2003-2005), SD Negeri Kedung Baruk I (2005-2010), SMP Negeri 12 Surabaya (2010-2013), SMA Negeri 16 Surabaya (2013-2016). Penulis diterima sebagai mahasiswa sarjana di Institut Teknologi Sepuluh Nopember melalui jalur SNMPTN pada tahun 2016. Di Departemen Fisika, Fakultas Sains dan Analitika Data, penulis terdaftar sebagai mahasiswa angkatan 2016 Fisika dengan NRP 01111640000003 dan mengambil bidang minat material serta menjadi salah satu anggota Tim Bahan Alam di bawah bimbingan Prof. Suminar Pratapa, Ph.D. Apabila ada kritik dan saran dapat dikirim ke wiwitwulandarii21@gmail.com.