

PENGARUH pH PADA SINTESIS OKSIDA PEROVSKIT $ZnTiO_3$ DENGAN METODE KOPRESIPITASI

pH Effect at Synthesis Oxide Perovskite $ZnTiO_3$ using Copresititation Methode

David Hamonangan Simanungkalit, Edi Mikrianto, Dahlena Ariyani
Program Studi Kimia FMIPA Universitas Lambung Mangkurat, Banjarbaru
Jl. A. Yani Km. 35,8 Banjarbaru 70714 Kalimantan Selatan
Email: mikrianto@yahoo.co.uk

ABSTRAK

Oksida perovskit $ZnTiO_3$ telah berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi dengan variasi pada pH 5, pH 7, pH 9 dan pH 11 menggunakan larutan NaOH sebagai bahan pengendap. Sintesis oksida perovskit $ZnTiO_3$. Hasil sintesis kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan *X-ray diffractrometer* (XRD) dan *scanning electron microscopy* (SEM). Berdasarkan pola difraksi sinar-X. Oksida hasil sintesis pada pH 5, pH 7 dan pH 11 telah terbentuk fasa oksida perovskit $ZnTiO_3$, sedangkan pada pH 9 terbentuk senyawa Zn_2TiO_4 . Kristalinitas yang tertinggi terdapat pada Oksida perovskit $ZnTiO_3$ pH 11 dengan sistem kristal heksagonal dengan $\alpha, \beta = 90^\circ$; $\gamma = 120^\circ$, grup ruang Fd3m dan parameter sel $a = 4,4653$; $b = 4,4653$; $c = 5,5362$. Ukuran kristal (*crystallite size*) dapat dihitung dengan persamaan Debye Scherrer dengan nilai panjang gelombang, intensitas, 2θ , dan FWHM yang dihasilkan dari uji XRD. Ukuran kristal oksida perovskit $ZnTiO_3$ pH 11 sebesar 53,47 nm. Hasil Karakterisasi SEM dengan perbesaran 10.000 kali pada $ZnTiO_3$ pH 11 kristal berbentuk polikristalin.

Kata kunci: Perovskit, Kopresipitasi, XRD, SEM

ABSTRACT

$ZnTiO_3$ perovskite oxide has been successfully synthesized by coprecipitation method variations in pH 5, pH 7, pH 9 and pH 11 using NaOH solution as a precipitant. The results of the synthesis then characterized using X-ray diffractrometer (XRD) and scanning electron microscopy (SEM). Based on X-ray diffraction pattern obtained, it is known that oxides synthesized at pH 5, pH 7 and pH 11 were formed $ZnTiO_3$ perovskite oxide phase, whereas at pH 9 formed Zn_2TiO_4 compounds. The highest Crystallinity is in $ZnTiO_3$ perovskite oxide of pH 11 with a hexagonal crystal system and $\alpha, \beta = 90^\circ$; $\gamma = 120^\circ$, space group of Fd3m and cell parameters of $a = 4.4653$; $b = 4.4653$; $c = 5.5362$. The crystallite size can be calculated Debye Scherrer equation with values of wavelength, intensity, 2θ , and FWHM resulted from XRD test. The size of $ZnTiO_3$ Perovskite oxide crystal pH 11 is 53.47 nm. The result of SEM Characterization with a magnification of 10,000 times on $ZnTiO_3$ pH 11 with polycrystalline shaped.

Keywords: Perovskites, Coprecipitation, XRD, SEM

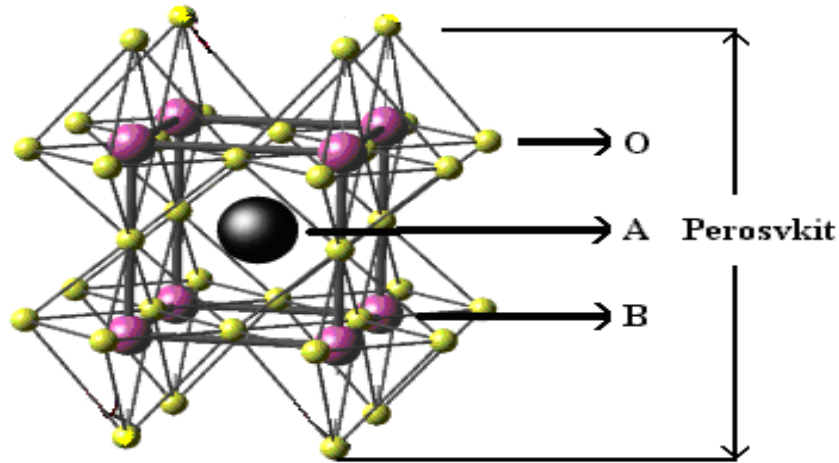
PENDAHULUAN

Perovskit merupakan oksida logam yang memiliki rumus umum ABO_3 dengan A adalah ion-ion logam blok-*d*, atau *f*- yang berukuran lebih besar sedangkan B merupakan ion-ion logam blok *d*-atau logam transisi (Tien-Thao *et al.*, 2007). Jumlah

muatan kation A dan B adalah +6, yang dapat tersusun dari kation yang bermuatan (1+5), (2+4) atau (3+3), hal tersebut agar terjadi keseimbangan muatan dengan muatan negatif 6 yang dibawa oleh tiga ion oksigen (Wold & Dwight, 1993). Dulin & Rase (1960) telah memperkenalkan sintesis

pertama senyawa oksida yang terdiri dari ZnO dan TiO₂ dan menjelaskan ada tiga senyawa yang terbentuk dalam senyawa

ZnO-TiO₂ yaitu Zn₂TiO₄ (kubik), ZnTiO₃ (heksagonal) dan Zn₂Ti₃O₈ (kubik).



Gambar 1. Struktur kristal perovskit.

Senyawa oksida perovskit ZnTiO₃ dimana pada posisi A ditempati oleh kation Zn²⁺, sedangkan pada posisi B ditempati oleh kation Ti⁴⁺. Oksida perovskit ini memiliki sifat oksidasi dan reduksi yang baik, dapat menghantarkan ion oksigen, memiliki aktivitas dan selektivitas yang tinggi, dapat mempertahankan integritasnya saat berada dalam keadaan tereduksi dan kembali kekeadaan asalnya setelah direoksidasi (Thoriyah, 2009). Senyawa oksida perovskit ZnTiO₃ menjadi perhatian para peneliti karena pentingnya dalam aplikasi yang berfungsi sebagai optoelektronik (Ali *et al.*, 2013), dielektrik (Chaouchi *et al.*, 2007), *microwave resonator materials* (Kim *et al.*, 1999), sensor gas (etanol, NO, CO) (Obayashi *et al.*, 1976), katalis (Bartram,

1961) dan pigmen cat (McCord & Saunder, 1945).

Teknik sintesis untuk memperoleh ZnTiO₃ bermacam-macam, seperti teknik metode *solid-state* (Dulin & Rase, 1960), metode sol-gel (Yamaguchi *et al.*, 1987), dan sintesis garam cair (Idrissi *et al.*, 1999). Selain itu beberapa tahun terakhir ini telah dilaporkan bahwa sintesis oksida perovskit dengan metode kopresipitasi telah dapat dilakukan. Metode kopresipitasi merupakan metode sintesis senyawa anorganik yang didasarkan pada pengendapan lebih dari satu substansi secara bersama-sama ketika melewati titik jenuh. Lu *et al.*, (2007) menjelaskan metode kopresipitasi menghasilkan distribusi ukuran butir yang relatif sempit dan dapat dilakukan pada kondisi lingkungan normal.

Melalui metode kopresipitasi, nilai pH larutan mempunyai peranan penting pada morfologi dan distribusi ukuran partikel yang terbentuk. Nilai pH larutan bertujuan sebagai pengontrol ukuran partikel. Material dengan ukuran nanometer mempunyai sifat lebih kuat, lebih ringan, lebih menghantarkan listrik, lebih bersifat magnetik, sifat optis, isolasi termal lebih baik, dan kurang korosif yang tidak dijumpai pada material ukuran besar (*bulk*) (Saidah & Zainuri, 2012; Anggraita, 2006). Oleh karena itu metode kopresipitasi dengan pengendap NaOH dilakukan variasi pH 5, 7, 9, dan 11. Fokus penelitian yang akan dikaji adalah pengaruh pH pada sintesis oksida logam perovskit $ZnTiO_3$ dengan metode kopresipitasi. Oksida-oksida perovskit yang dihasilkan kemudian dikarakterisasi menggunakan Difraksi Sinar-X (XRD) untuk mengetahui struktur hasil sintesis dan *Scanning Electron Microscope* (SEM) untuk mengetahui morfologi permukaan kristal. Penentuan ukuran kristal (*crystallite size*) dari data hasil Difraksi Sinar-X (XRD) dilakukan pendekatan persamaan Debye Scherrer.

METODE PENELITIAN

Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan pada penelitian ini adalah neraca analitik OHAUS model Galaxy TM, kertas saring, pH meter Type LTIutron, stopwatch, seperangkat alat gelas, corong *Buchner*, oven, alat difraksi

sinar-X (XRD) dan *Scanning Electron Microscope* (SEM) Type JEOL-JSM-6510LV.

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah TiO_2 (99,99% *Aldrich*), $ZnSO_4 \cdot 7H_2O$ (99,5% *Merck*), H_2SO_4 (95-97% *Merck*), metanol 99,8%, NaOH (99 % *Merck*) dan akuabides.

Prosedur Kerja

Sintesis Oksida Perovskit $ZnTiO_3$

Sintesis oksida perovskit $ZnTiO_3$ diawali dengan pembuatan larutan sulfat dari logam-logamnya yaitu larutan seng sulfat ($ZnSO_4$) dan titanium disulfat ($Ti(SO_4)_2$). Larutan $ZnSO_4$ dibuat dengan mencampurkan 3,58 gram $ZnSO_4 \cdot 7H_2O$ ke dalam 60 ml akuabides. Pelarutan $ZnSO_4 \cdot 7H_2O$ ke dalam akuabides dilakukan dengan pengadukan konstan menggunakan pengaduk magnetik pada suhu $70^\circ C$ dengan kecepatan 400 rpm hingga semua serbuk $ZnSO_4 \cdot 7H_2O$ larut dan menjadi jenuh sampai tersisa 30 ml larutan. Sementara larutan $Ti(SO_4)_2$ dibuat dengan mencampurkan 0,99 gram TiO_2 ke dalam 3 ml larutan H_2SO_4 95-97%. Pelarutan TiO_2 ke dalam larutan H_2SO_4 95-97% dilakukan dengan pengadukan konstan menggunakan pengaduk magnetik pada suhu $70^\circ C$ dengan kecepatan 400 rpm hingga semua serbuk TiO_2 larut.

Larutan $ZnSO_4$ dan $Ti(SO_4)_2$ yang telah disiapkan selanjutnya dicampurkan. Pada larutan yang terbentuk kemudian ditambahkan larutan NaOH 10 M berlebih

dan diaduk dengan pengaduk magnetik selama 1 jam. Penambahan larutan NaOH dilakukan dengan variasi pH 5, 7, 9 dan 11. Endapan yang terbentuk kemudian disaring dengan kertas saring *Whatman* dengan corong *buchner*. Endapan tersebut selanjutnya dicuci dengan metanol 99,8% dan akuabides hingga didapat filtrat dengan pH netral. Setelah pH filtrat hasil pencucian menjadi netral, endapan pada kertas saring selanjutnya dikeringkan di dalam oven pada suhu 100°C selama 4 jam sehingga diperoleh endapan kering (Thoriyah, 2009).

Analisis XRD Oksida Perovskit ZnTiO₃

Oksida-oksida perovskit yang dihasilkan kemudian dilakukan karakterisasi menggunakan Difraktometer Sinar-X (XRD) dari sumber sinar logam Cu-K_α dengan panjang gelombang 1,54056 Å. Karakterisasi senyawa perovskit dilakukan dengan difraktometer Sinar-X dengan jangkauan pengukuran 2θ : 10-90° yang ada di Laboratorium *Scanning Electron Microscope* (SEM) FMIPA ITB. Data hasil Difraksi Sinar-X (difraktogram) yang didapatkan kemudian dibandingkan dengan *Data Base* (PDF) *Powder Diffraction File* yang dikeluarkan oleh JCPDS (*Joint Committee on Powder Diffraction Standard*) sehingga dapat diketahui apakah senyawa oksida logam perovskit ZnTiO₃ telah terbentuk. Kemudian dengan analisis *Rietveld* menggunakan program *Rietica* akan ditentukan indeks

Miller, grup ruang dan parameter sel dari oksida perovskit hasil sintesis.

Analisis SEM Oksida Perovskit ZnTiO₃

Karakterisasi *Scanning Electron Microscope* (SEM) untuk mengetahui morfologi permukaan partikel dari hasil sintesis. Karakterisasi *Scanning Electron Microscope* (SEM) dilakukan di Laboratorium *Scanning Electron Microscope* (SEM) FMIPA ITB dengan pengambilan gambar sampel pada perbesaran 10.000 kali dan 20.000 kali.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Oksida Perovskit ZnTiO₃ dengan Metode Kopresipitasi

Senyawa oksida perovskit ZnTiO₃ dalam penelitian ini telah berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi. Sintesis oksida perovskit ZnTiO₃ diawali dengan pembuatan larutan sulfat dari logam-logamnya yaitu larutan seng sulfat (ZnSO₄) dan titanium disulfat (Ti(SO₄)₂). Pembuatan larutan ZnSO₄ dibuat dengan cara melarutkan ZnSO₄·7H₂O dalam 60 ml akuabides. Larutan ZnSO₄ merupakan sumber ion Zn²⁺ untuk oksida perovskit. Penggunaan akuabides sebagai pelarut mengacu pada sifat padatan ZnSO₄·7H₂O yang dapat larut dalam air (Windholtz, 1983). Proses pelarutan ZnSO₄ dilakukan dengan pengadukan konstan menggunakan pengaduk magnetik pada suhu 70 °C dengan kecepatan 400 rpm hingga semua serbuk ZnSO₄·7H₂O larut dan didapatkan larutan ZnSO₄ bening.

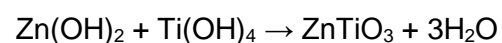
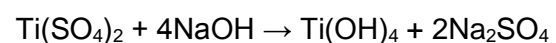
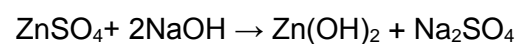
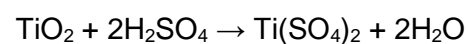
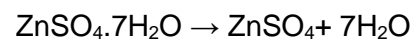
Penggunaan suhu sebesar 70 °C pada 400 rpm bertujuan untuk menghomogenkan larutan dan untuk membuat larutan ZnSO₄ jenuh. Larutan yang terbentuk tak berwarna karena ion seng tidak bisa menyerap cahaya tampak disebabkan ketika seng dengan keadaan oksidasi +2 dan ion Zn yang terbentuk akan memiliki konfigurasi [Ar]3d¹⁰ sehingga tidak memiliki elektron yang tidak berpasangan pada sub kulit *d*-nya hal ini yang menyebabkan ion seng tidak bisa menyerap cahaya tampak (Greenwood, 1997).

Pembuatan larutan Ti(SO₄)₂ dibuat dengan melarutkan TiO₂ dalam larutan H₂SO₄ 95-97%. Larutan Ti(SO₄)₂ merupakan sumber ion Ti⁴⁺ untuk oksida perovskit. Penggunaan H₂SO₄ sebagai pelarut mengacu pada sifat padatan TiO₂ yang tidak larut dalam HCl, HNO₃, dan akuaregia, tetapi larut dalam H₂SO₄ pekat. (Windholtz, 1983). Pelarutan TiO₂ ke dalam larutan H₂SO₄ 95-97% dilakukan dengan pengadukan konstan menggunakan pengaduk magnetik pada suhu 70°C dengan kecepatan 400 rpm hingga semua serbuk TiO₂ larut.

Larutan ZnSO₄ dan Ti(SO₄)₂ yang telah disiapkan selanjutnya dicampurkan. Larutan yang terbentuk ditambahkan larutan NaOH 10 M dan diaduk dengan pengaduk magnetik selama 1 jam untuk memastikan pengendapan ion logam terjadi secara sempurna dan homogen (Berchmans *et al.*, 2008). Larutan NaOH 10 M kemudian

ditambahkan ke dalam campuran larutan tersebut sampai didapatkan larutan pH 5, 7, 9 dan 11. Penambahan larutan NaOH ini bertujuan sebagai bahan pengendap campuran kation-kation logam oksida perovskit (Jadhav *et al.*, 2007).

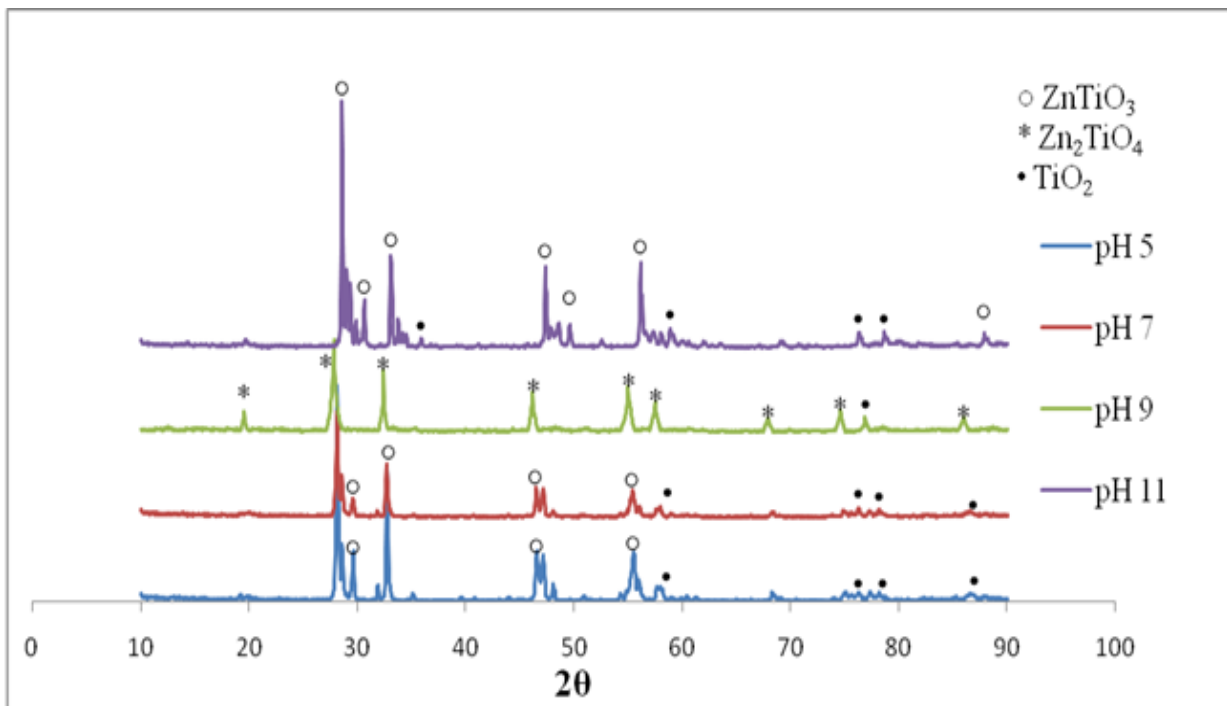
Larutan kemudian disaring dengan kertas saring *Whatman* dengan corong *buchner*. Endapan selanjutnya dicuci dengan metanol dan akuabides hingga pH filtrat menjadi netral. Penambahan metanol bertujuan untuk menghilangkan ion Na⁺ dan garam-garam yang terlarut. Endapan yang telah dicuci dikeringkan di dalam oven 105 °C selama 4 jam untuk menghilangkan kandungan air sehingga diperoleh endapan kering. Metanol digunakan sebagai bahan pencuci pada penelitian ini karena kelarutan larutan NaOH yang tinggi dalam metanol, selain itu metanol juga bersifat mudah menguap (titik didih 64,5°C) sehingga endapan lebih cepat kering. Endapan kering selanjutnya digerus hingga halus menggunakan *agate mortar* sehingga didapatkan serbuk prekursor oksida perovskit. Kemungkinan reaksi yang terjadi:



Karakterisasi XRD Oksida Perovskit ZnTiO₃

Analisis difraksi sinar X dilakukan dengan panjang gelombang (λ) radiasi CuK α sebesar 1,54056Å dan jangkauan pengukuran 2θ : 10-90° dengan tahapan

ukuran sebesar $2\theta = 0,05$ serta waktu 1 detik pertahapan yang merupakan puncak karakteristik dari oksida perovskit, difraktogram oksida perovskit ZnTiO₃ diperlihatkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Hasil sintesis oksida perovskit pada pH 5, pH 7, pH 9, dan pH 11

Hasil sintesis pada pH 5 menunjukkan keberadaan fasa oksida perovskit ZnTiO₃. Keberadaan puncak fasa perovskit tersebut mempunyai kemiripan dengan puncak difraksi oksida perovskit induk ZnTiO₃ dengan data JCPDSFOM 0,035/1/28 Card 14-0033. Difraktogram hasil sintesis oksida perovskit pada pH 7 memiliki kemiripan dengan puncak difraksi difraktogram induk ZnTiO₃ JCPDSFOM 0,019/1/28 Card 14-0033. Difraktogram hasil sintesis oksida perovskit pada pH 11 memiliki kemiripan dengan puncak difraksi difraktogram induk ZnTiO₃

JCPDSFOM 0,047/2/17 Card 39-0190. Sedangkan hasil sintesis pada pH 9 terdapat puncak lain pada $2\theta = 19,50^\circ$ dan pergeseran pada $2\theta = 27,75^\circ$ yang menyebabkan bentuk geometri senyawa berubah dan terbentuk senyawa Zn₂TiO₄. Difraktogram oksida perovskit yang disintesis pada pH 9 memiliki kemiripan dengan senyawa Zn₂TiO₄ dengan data JCPDSFOM 0,020/1/15 Card 25-1164.

Hasil sintesis pada pH 5, pH 7, pH 9 dan pH 11 terdapat pengotor berupa TiO₂ yang ditunjukkan pada Gambar 2. Pengotor

TiO₂ dimungkinkan sebagian padatan TiO₂ tidak larut secara sempurna dalam H₂SO₄ pada saat proses pembuatan larutan. Namun pengotor TiO₂ berdasarkan difraktogram tidak terlalu signifikan yang ditandai dengan intensitas yang rendah.

Bentuk kristal dengan tingkat kristalinitas tinggi ini dapat dilihat dari hasil perhitungan dengan menggunakan program Phasax. Pada puncak dengan intensitas

tinggi menunjukkan nilai FWHM (*Full Width at Half Maximum*) dan luas area yang relatif kecil. Semakin kecil nilai FWHM dan luas area maka akan menunjukkan kecenderungan bahwa bahan tersebut mempunyai kristalinitas yang tinggi (Suryanarayana & Norton, 1998). Nilai kristalinitas suatu kristal ini sangatlah penting dalam aplikasinya terutama dalam pengukuran sifat karakteristik feroelektrik.

Tabel 1. Perbandingan hasil oksida perovskit ZnTiO₃ variasi pH 5, 7, 11 dan Zn₂TiO₄

| No | Faktor Perbandingan | Oksida Perovskit ZnTiO ₃ | | | Zn ₂ TiO ₄ |
|----|-----------------------------|-------------------------------------|--------|--------|----------------------------------|
| | | pH 5 | pH 7 | pH 11 | |
| 1. | Posisi puncak(2θ) | 28,10° | 28,05° | 28,50° | 27,75° |
| 2. | Intensitas puncak tertinggi | 2559 | 1246 | 2925 | 1102,55 |
| 3. | FWHM | 0,2319 | 0,2154 | 0,1516 | 0,4457 |
| 4. | Area | 0,14 | 0,13 | 0,09 | 0,28 |

Tabel 1 memperlihatkan nilai perbandingan FWHM antara difraktogram-difraktogram untuk setiap variasi pH. Pada Tabel 1 dapat dilihat bahwa senyawa oksida logam perovskit ZnTiO₃ yang terbentuk pada variasi pH 11 memiliki nilai yang paling kecil, sehingga dapat disimpulkan bahwa struktur senyawa yang terbentuk pada variasi pH ini adalah yang paling tinggi ditinjau dari kemurnian fasa dan tingkat kristalinitasnya.

Berdasarkan data yang diperoleh maka disimpulkan bahwa pH optimum untuk sintesis oksida perovskit ZnTiO₃ melalui metode kopresipitasi berada dalam pH 11.

Peningkatan pH dapat menyebabkan peningkatan kristalinitas. Semakin naik pH sintesis maka kristalinitas semakin tinggi.

Ukuran Kristal (*crystallite size*) Oksida Perovskit ZnTiO₃

Penentuan ukuran Kristal dengan persamaan Debye Scherrer dapat digunakan dengan dengan cara mengambil puncak tertinggi yang paling jelas pada pola difraktogram. Nilai yang digunakan adalah panjang gelombang $\lambda = 0,15406$, $K = 0,89$, 2θ dan FWHM dari hasil uji XRD. Berikut hasil perhitungan ukuran kristal dengan persamaan Debye Scherrer:

Tabel 2. Ukuran kristal (*crystallite size*) oksida perovskit

| Senyawa | 2θ | θ | $\cos \theta$ | FWHM | FWHM rad (β) | Ukuran Kristal (nm) |
|--|-----------|----------|---------------|--------|----------------------|---------------------|
| (ZnTiO ₃) pH 5 | 28,0838 | 14,0419 | 0,9701 | 0,2319 | 0,0040 | 34,92 |
| (ZnTiO ₃) pH 7 | 28,0610 | 14,0305 | 0,9702 | 0,2154 | 0,0038 | 37,59 |
| (Zn ₂ TiO ₄) pH 9 | 27,7553 | 13,8777 | 0,9708 | 0,4457 | 0,0078 | 18,16 |
| (ZnTiO ₃) pH 11 | 28,5267 | 14,2634 | 0,9692 | 0,1516 | 0,0026 | 53,47 |

Berdasarkan Tabel 2 dapat dilihat bahwa ukuran kristal senyawa oksida perovskit ZnTiO₃ yang disintesis pada pH yang bervariasi menghasilkan ukuran kristal yang berbeda-beda. Hal ini menunjukkan bahwa pH larutan sintesis berpengaruh terhadap ukuran kristal. Faktor yang sangat berpengaruh terhadap ukuran kristal yang dihasilkan yaitu laju pembentukan inti dan laju pertumbuhan kristal. Laju pembentukan inti dan laju pertumbuhan kristal dipengaruhi oleh kelarutan dan supersaturasi. Kondisi kelarutan dan supersaturasi ini sangat ditentukan oleh pengaruh pH.

Berdasarkan Tabel 2 hasil sintesis pada kondisi pH 11 memiliki ukuran kristal yang paling besar sebesar 53,47 nm. Keberadaan ion OH⁻ lebih banyak dibandingkan dengan kondisi pH 5, pH 7, dan pH 9. Banyaknya ion OH⁻ menyebabkan kelarutan semakin rendah, sehingga menyebabkan sedikitnya endapan yang terbentuk. Kondisi kelarutan yang rendah akan terjadi supersaturasi yang rendah. Kondisi supersaturasi yang rendah lebih cenderung terjadi pertumbuhan kristal

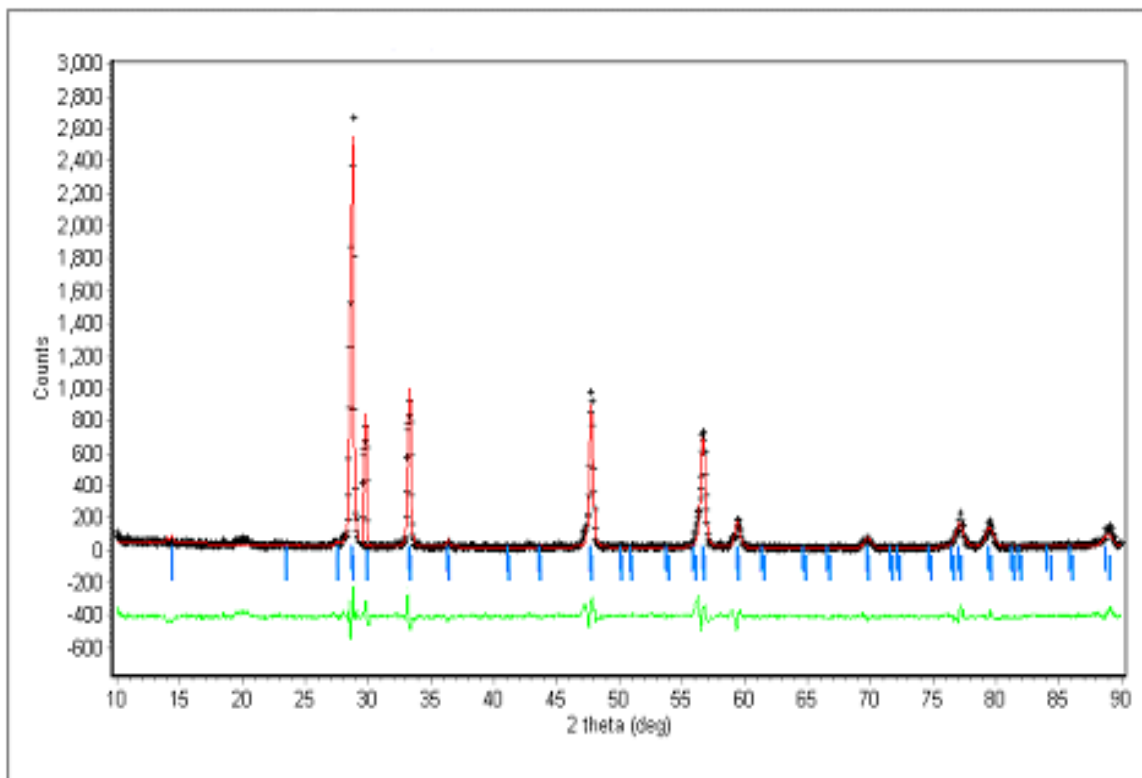
daripada terjadi pembentukan inti. Jika laju pertumbuhan kristal tinggi, maka akan didapatkan kristal dengan ukuran yang tinggi. Ukuran kristal pada kondisi pH 5 dan pH 7 sebesar 34,92 nm dan 37,59 nm. Kondisi pH 5 dan 7 menunjukkan ion OH⁻ lebih sedikit dibandingkan dengan kondisi pH 9 dan pH 11. Keberadaan ion OH⁻ yang sedikit mengarahkan ke sifat kelarutan semakin tinggi dan pada kondisi ini terjadi supersaturasi cukup tinggi. Kondisi supersaturasi yang cukup tinggi akan mendorong adanya laju pembentukan inti baru. Jika laju pembentukan inti tinggi, banyak sekali kristal yang akan terbentuk tetapi dengan ukuran yang kecil sehingga hasil sintesis pH 5 dan pH 7 memiliki ukuran kristal yang kecil.

Hasil sintesis pada pH 9 memiliki ukuran kristal yang paling kecil sebesar 18,16 nm. Kondisi pada pH 9 ini tidak sejalan dengan peneliti-peneliti sebelumnya, menurut Nugroho *et al.*, (2012) yang mensintesis nanopartikel ZnO menjelaskan bahwa semakin besar pH, maka semakin besar pula ukuran kristalnya.

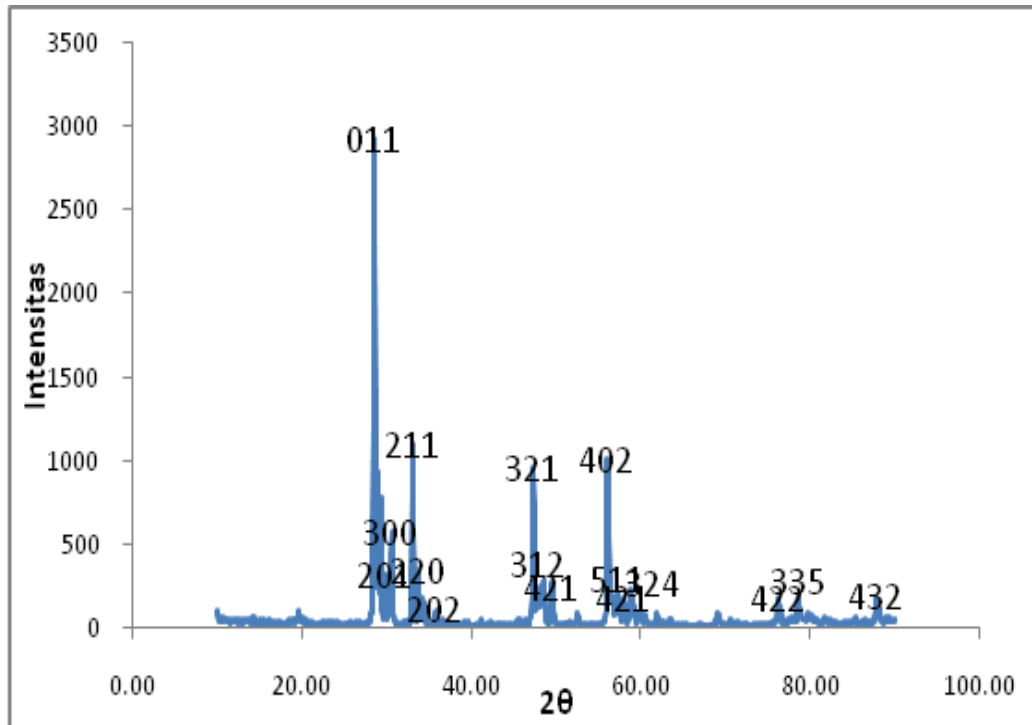
Hasil Analisis *Rietveld*

Data hasil difraksi kemudian diolah dengan metode *Rietveld* menggunakan program *Rietica*. Dari pengolahan dengan menggunakan metode *Rietveld* ini didapatkan nilai indeks Miller, parameter sel, grup ruang dan bentuk geometri dari oksida perovskit ZnTiO_3 yang dihasilkan. Gambar 3 memperlihatkan difraktogram oksida

perovskit ZnTiO_3 hasil sintesis dengan metode kopresipitasi yang sudah diolah dengan program *Rietica*. Gambar 3 diambil pada nilai kristalinitas yang tertinggi yaitu pada pH 11. Data indeks Miller dari hasil sintesis dengan metode kopresipitasi hasil pengolahan program *Rietica* dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 3. Hasil pengolahan data difraktogram hasil sintesis oksida perovskit pH 11 menggunakan metode Rietveld program Rietica.



Gambar 4. Difraktogram hasil sintesis oksida perovskit ZnTiO_3 pH 11 metode kopresipitasi beserta indeks Millernya.

Tabel 3. Sistem kristal, grup ruang dan parameter sel senyawa oksida perovskit ZnTiO_3 pH 11 hasil pengindeksan program *Rietica*.

| Sistem Kristal | Parameter | |
|---|------------|--|
| | Grup Ruang | Parameter Sel |
| Heksagonal $\alpha = \beta = 90^\circ$ $\gamma = 120^\circ$ | Fd3m | a : 4,4653 b : 4,4653 c : 5,5362 |

Karakterisasi SEM Oksida Perovskit ZnTiO_3

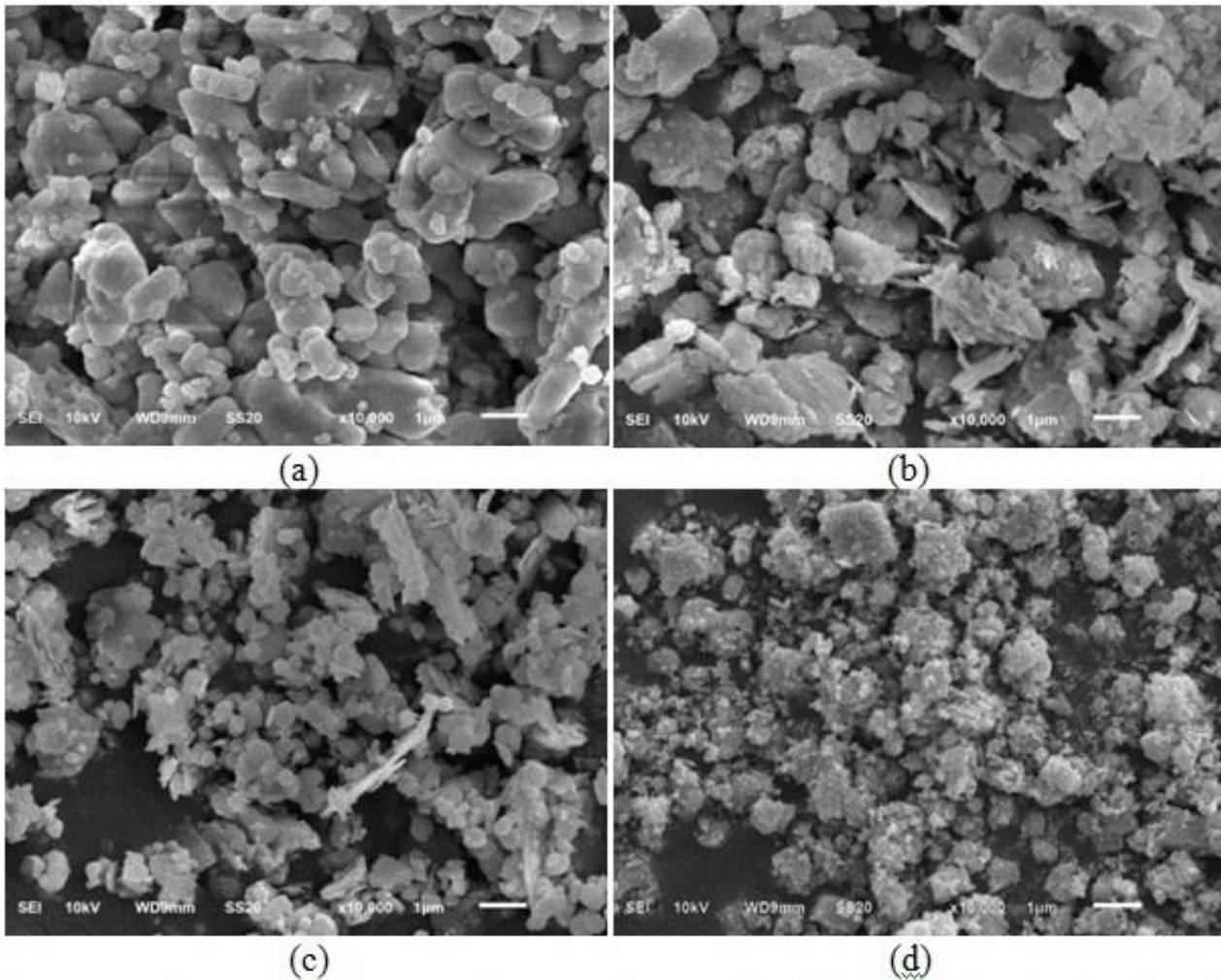
Nilai pH mempunyai dampak yang besar pada morfologi dan ukuran partikel karena nilai pH dapat mempengaruhi daya larut pereaksi dan rasio konfigurasi ion yang dapat larut dan mengendap (Qingzhu et al., 2011). Gambar 5 menunjukkan hasil sintesis pH 5 (a), pH 7 (b), pH 9 (c) dan pH 11 (d) dengan perbesaran 10.000 kali. Hasil sintesis pH 5, pH 7 dan pH 11 memiliki fasa perovskit

ZnTiO_3 sedangkan pH 9 berada pada fasa Zn_2TiO_4 .

Berdasarkan data yang diperoleh pada Gambar 5 morfologi dan ukuran butiran dipengaruhi oleh nilai pH dari larutan reaksi. Morfologi permukaan partikel menunjukkan bahwa butiran semakin mengecil dengan naiknya pH. Homogenitas partikel meningkat dan tersebar secara merata pada pada kondisi suasana basa. Morfologi dan ukuran partikel dapat dihubungkan dengan pengaruh

prekursor serta laju pembentukan inti (nukleasi) dan laju pertumbuhan inti butiran. Naiknya pH menyebabkan laju pengendapan (deposisi) konfigurasi ion lebih tinggi dari laju larut (disolusi) sehingga terjadi tahap pembentukan inti. Tahap pembentukan inti tersebut lebih dominan daripada

pertumbuhan kristal (Yuniartiet *al.*, 2013). Penyebab dari terjadinya pembentukan inti dimungkinkan karena proses khelasi NaOH dengan Zn^{2+} dan Ti^{4+} menghambat pertumbuhan kristal sehingga ukuran partikel yang dihasilkan berukuran kecil.



Gambar 5. Hasil sintesis karakterisasi SEM (a) pH 5 (b) pH 7 (c) pH 9 dan (d) pH 11 perbesaran 10.000 kali

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan maka dapat diambil kesimpulan sebagai berikut:

1. Oksida perovskit $ZnTiO_3$ telah berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi menggunakan larutan NaOH sebagai bahan pengendap dan terdapat pengotor berupa TiO_2 .

2. Kenaikan pH menyebabkan nilai kristalinitas semakin tinggi yang diindikasikan pada nilai FWHM dan luas area semakin kecil, kristalinitas yang tertinggi terdapat pada oksida perovskit ZnTiO_3 pH 11.
3. Struktur oksida perovskit ZnTiO_3 pH 11 memiliki sistem kristal heksagonal dengan $\alpha, \beta = 90^\circ$; $\gamma = 120^\circ$, parameter sel $a = 4,4653$; $b = 4,4653$ dan $c = 5,5362$, dan grup ruang $Fd3m$.
4. Ukuran kristal oksida perovskit ZnTiO_3 melalui persamaan Debye Scherrer yang disintesis pada pH yang bervariasi menghasilkan ukuran kristal yang berbeda-beda, hasil sintesis pada pH 5 sebesar 34,92 nm, pH 7 sebesar 37,59 nm, pH 9 sebesar 18,16 nm, dan pH 11 sebesar 53,47 nm.
5. Morfologi permukaan partikel menunjukkan butiran semakin mengecil dengan naiknya nilai pH, naiknya pH menyebabkan terjadi tahap pembentukan inti sehingga ukuran partikel yang dihasilkan berukuran kecil, selain itu homogenitas partikel meningkat dan tersebar secara merata pada kondisi suasana basa.

DAFTAR PUSTAKA

Ali, Z., S. Ali, I. Ahmad, I. Khan, H. A. R. Aliabad. 2013. Structural and optoelectronic properties of the zinc titanate perovskite and spinel by modified Becke–Johnson potential. *Physica B*. **420**: 54-57.

- Anggraita, P. 2006. Penelitian Bahan Nano (Nanomaterial) Di Badan Tenaga Nuklir Nasional. *Indonesian Journal of Materials Science*. Edisi khusus: 6-8.
- Berchmans, L. J., R. Sindhu, S. Angappan, & C.O. Augustin. 2008. Effect of antimony substitution on structural and electrical properties of LaFeO_3 . *Journal of Materials Processing Technology*. **207**: 301–306.
- Chaouchi, A., M. Aliouat, S. Marinel, S. d’Astorg, & H. Bourahla. 2007. Effects of Additives on The Sintering Temperature And Dielectric Properties of ZnTiO_3 Based Ceramic. *Ceramic International*. **33**: 245–248.
- Dulin, F. H. & D. E. Rase. 1960. Phase equilibria in the system $\text{ZnO}-\text{TiO}_2$. *Journal of The American Ceramic Society*. **43**: 125–131.
- Greenwood, N. N & A. Earnshaw. 1997. *Chemistry of The Elements Second Edition*. Universty Leeds, U.K.
- Idrissi, H., A. Aboujalil, J. P. Deloume, & G. Fantozzi. 1999. Molten salt prepared lead titanate. *Journal of the European Ceramic Society*. 19: 1997-2004.
- Jadhav, A. D., A. B. Gaikwad, V. Samuel, & V. Ravi. 2007. A low temperature route to prepare LaFeO_3 and LaCoO_3 . *Materials Letters*. 61: 2030–2032.
- Kim, H.T., S. Nahm, & J. D. Byun. 1999. Low-fired (Zn, Mg) TiO_3 microwave dielectrics. *Journal of The American Ceramic Society*. 82: 3476–3480.
- Lu, A. H., E. L. Salabas, & F. Schüth. 2007. Magnetic Nanoparticles: Synthesis, Protection, Functionalization and Application. *Angewandte Chemie International Edition*. **46**: 1222-1244.
- McCord, A. T. & H. F. Saunder. 1945. Preparation of pigmentary materials. *United States Patent Office*. 445022: 1-8.
- Nugroho, D. W., P. R. Akwalia, T. P. Rahman, Nofrizal, R. Ikono, W. B. Widayanto, A. Sukarto, Siswanto, & N. T. Rochman. 2012. *Pengaruh Variasi pH Pada Sintesis Nanopartikel ZnO Dengan Metode Sol-Gel*. Prosiding Pertemuan

- Ilmiah Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Bahan, Serpong. Hal: 63-66.
- Obayashi. H., Y. Sakurai, & T. Gejo. 1976. Perovskite-Type Oxide as Ethanol Sensors. *Journal of Solid State Chemistry*. **17**: 299–303.
- Saidah, I. N. & Zainuri. M. 2012. Pengaruh Variasi pH Pelarut HCl Pada Sintesis Barium M Heksaferrit Dengan Doping Zn ($\text{BaFe}_{11,4}\text{Zn}_{0,6}\text{O}_{19}$) Menggunakan Metode Kopresipitasi. *Jurnal Sains Dan Seni ITS*. **1**: B41-B46.
- Thoriyah, A. 2009. *Sintesis Oksida Perovskit $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CoO}_{3-\delta}$ Dengan Metode Kopresipitasi Dan Karakterisasinya*. Prosiding Kimia FMIPA, Surabaya.
- Tien-Thao, N., H. Zahedi-Niaki, H. Alamdari, & S. Kaliaguine. 2007. Co-Cu metal alloys from $\text{LaCo}_{1-x}\text{Cu}_x\text{O}_3$ perovskites as catalysts for higher alcohol synthesis from syngas. *International Journal Chemical Reactor Engineering*. **A82**: 1-14.
- Windholz, M., S. Budhavari, R. F. Blumetti, & E. S. Otterbein, 1983. *The Merck Index an Encyclopedia of Chemicals, Drugs, and Biologicals, 10th edition*. New York Merck & Co., Inc.
- Wold, A. & K. Dwight. 1993. *Solid State Chemistry, Synthesis, Structure, and Properties of Selected Oxides and Sulfides*. Chapman & Hall In, New York.
- Yamaguchi, O., Morimi. M, Kawabata. H, Shimizu. K. 1987. Formation and transformation of ZnTiO_3 . *Journal of The American Ceramic Society*. **70**: c97–c98.
- Yuniarti, E., J. Triwibowo, E. Suharyadi. 2013. Pengaruh pH, Suhu dan Waktu pada Sintesis LiFePO_4/C dengan Metode *Sol-Gel* Sebagai Material Katoda untuk Baterai Sekunder Lithium. *Berkala MIPA*. **23**: 218-228.