

**PENGARUH VARIASI WAKTU PADA SINTESIS PbZrTiO_3
DENGAN METODE *MOLTEN SALT***

SKRIPSI

Dibuat untuk memenuhi syarat mendapatkan gelar Sarjana Teknik dari Jurusan
Teknik Metalurgi Universitas Sultan Ageng Tirtayasa



Oleh :

Ryan Muhamad Rizki
3334170071

**JURUSAN TEKNIK METALURGI FAKULTAS TEKNIK
UNIVERSITAS SULTAN AGENG TIRTAYASA
CILEGON – BANTEN
2024**

LEMBAR PENGESAHAN

**PENGARUH VARIASI WAKTU PADA SINTESIS $PbZrTiO_3$ DENGAN
METODE *MOLTEN SALT***

SKRIPSI

Dibuat untuk memenuhi syarat mendapatkan gelar Sarjana Teknik dari Jurusan
Teknik Metalurgi Universitas Sultan Ageng Tirtayasa

Disetujui untuk Jurusan Teknik Metalurgi Oleh :

Pembimbing I



Prof. Alfirano, S.T., M.T., Ph.D
NIP. 1974062920031210001

Pembimbing II



Drs. Syahfandi Ahda, M.T.
NIP. 196002021987021001

LEMBAR PERSETUJUAN

**PENGARUH VARIASI WAKTU PADA SINTESIS $PbZrTiO_3$
DENGAN METODE *MOLTEN SALT***

Disusun dan diajukan Oleh :

Ryan Muhamad Rizki

3334170071

Telah disidangkan di depan dewan penguji pada tanggal

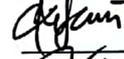
03 Agustus 2023

Susunan Dewan Penguji

Tanda Tangan

Penguji I

: Prof. Alfirano, S.T., M.T., Ph.D



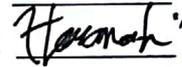
Penguji II

: Drs. Syahfandi Ahda, M.T.



Penguji III

: Indah Uswatun Hasanah, S.Si., M.T.



Skripsi ini telah diterima sebagai salah satu persyaratan untuk memperoleh gelar
Sarjana Teknik

Mengetahui

Ketua Jurusan Teknik Metalurgi



Abdul Aziz, S.T., M.T., Ph.D

NIP. 198003072005011002

LEMBAR PERNYATAAN

Dengan ini saya sebagai penulis Skripsi berikut:

Judul : Pengaruh Variasi Waktu pada Sintesis PbZrTiO_3 dengan
Metode *Molten Salt*

Nama Mahasiswa : Ryan Muhamad Rizki

NIM : 3334170071

Fakultas : Teknik

Menyatakan dengan sesungguhnya bahwa Skripsi tersebut di atas adalah benar benar hasil karya asli saya dan tidak memuat hasil karya orang lain, kecuali dinyatakan melalui rujukan yang benar dan dapat dipertanggungjawabkan. Apabila dikemudian hari ditemukan hal-hal yang menunjukkan bahwa sebagian atau seluruh karya ini bukan karya saya, maka saya bersedia dituntut melalui hukum yang berlaku. Saya juga bersedia menanggung segala akibat hukum yang timbul dari pernyataan yang secara sadar dan sengaja saya nyatakan melalui lembar ini.

Cilegon, 05 Juli 2024



Ryan Muhamad Rizki

NIM. 3334170071

ABSTRAK

Piezoelektrik merupakan bahan padat biasanya berbentuk kristal dan keramik yang menghasilkan muatan listrik apabila terkena tekanan mekanik. Penggunaan bahan ini biasanya banyak terdapat dalam rangkaian atau komponen elektronik seperti mikrofon, printer, osilator elektronik dan bahkan digunakan sebagai pembangkit listrik berdaya rendah. Pada tahun 2008, di stasiun Tokyo dikembangkan pembangkit listrik dengan menggunakan bahan piezoelektrik. Pembangkit listrik tersebut menghasilkan energi listrik dari tekanan yang dihasilkan penumpang pada lantai yang telah diganti dengan bahan piezoelektrik. Sintesis bahan PZT biasanya menggunakan beberapa metode, diantaranya adalah *solid solution reaction*, *sol-gel methode*, dan yang terbaru adalah menggunakan metode *molten salt*. Metode *molten salt* adalah salah satu metode sintesis bahan dengan menggabungkan bahan dasar dengan lelehan garam. Garam yang digunakan adalah campuran garam NaCl-KCl. Campuran garam dan bahan dasar digerus selama 4 jam agar homogen. Pada proses sintesis dengan metode *molten salt* variasi waktu mempunyai peranan yang cukup penting. Pada percobaan ini bahan dasar dan garam dicampurkan dengan perbandingan 1:1,6 secara berturut-turut. Variasi waktu pemanasan yang digunakan adalah 1,1 jam, 3,1 jam, 4,5 jam dan 5 jam. Setelah melalui proses pemanasan sampel kemudian dicuci untuk menghilangkan kandungan garam. Setelah itu sampel dikarakterisasi menggunakan mesin XRD dan dilakukan analisa dengan *software Highscore Plus*. Hasil dari percobaan ini didapatkan bahan PZT yang terbentuk dan beberapa pengotor. Pada proses pemanasan 1,1 jam dan 3,1 jam sudah terbentuk PZT tetapi masih banyak pengotor. Barulah pada proses pemanasan 4,5 jam dan 5 jam didapat produk PZT yang mengandung sedikit produk pengotor.

Kata Kunci : Piezoelektrik, *Molten Salt*, PZT, XRD

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis ucapkan kepada Tuhan Yang Maha Esa, atas segala limpahan kebaikan dan kemurahan-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan Proposal Skripsi ini yang merupakan salah satu syarat kelulusan sebagai sarjana teknik metalurgi di Fakultas Teknik Universitas Sultan Ageng Tirtayasa. Dalam kesempatan ini penulis ingin mengucapkan terima kasih kepada :

1. Bapak Abdul Aziz, S.T., M.T., Ph.D. selaku ketua jurusan Teknik Metalurgi..
2. Bapak Prof. Alfirano, S.T., M.T., Ph. D dan Bapak Drs. Syahfanfi Ahda, M.T, selaku pembimbing pertama dan kedua yang membimbing penulis dalam penyusunan skripsi ini.
3. Seluruh staf dan karyawan PSTBM-BATAN dan semua pihak instansi yang terkait dengan penelitian ini.
4. Kedua orang tua, adik, dan rekan-rekan saya yang telah memberikan dukungan dan do'anya.

Penulis menyadari bahwa Proposal Skripsi ini masih terdapat kekurangan, sehingga kritik dan saran yang membangun dari berbagai pihak diharapkan. Penulis berharap skripsi ini nantinya bisa bermanfaat khususnya bagi penulis dan bagi pembaca pada umumnya

Cilegon, Juli 2024



Ryan Muhamad Rizki

DAFTAR ISI

	Halaman
HALAMAN JUDUL.....	i
LEMBAR PENGESAHAN	ii
LEMBAR PERSETUJUAN.....	iii
LEMBAR PERNYATAAN	iv
ABSTRAK	v
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI.....	vii
DAFTAR TABEL.....	viii
DAFTAR GAMBAR	ix
 BAB I PENDAHULUAN	
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	2
1.3 Tujuan Penelitian.....	2
1.4 Ruang Lingkup Penelitian.....	3
 BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Bahan Piezoelektrik	4
2.2 <i>Lead Zirconate Titanate</i>	5
2.3 Proses Sintesis Molten Salt	7
2.4 Parameter Sintesis <i>Molten Salt</i>	10
2.5 Pengaruh Temperature pada Sintesis Molten Salt.....	11
2.6 Pengaruh Waktu Tahan pada Sintesis Molten Salt	12

2.7 Skema Proses Sintesis Molten Salt	13
BAB III METODE PENELITIAN	
3.1 Diagram Alir Penelitian	15
3.2 Alat dan Bahan	16
3.2.1 Alat yang Digunakan.....	16
3.2.2 Bahan yang Digunakan	17
3.3 Prosedur Penelitian.....	17
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	
4.1 Analisa Bahan Dasar	19
4.2 Sintesis <i>PZT</i> dengan <i>Molten Salt</i>	24
4.3 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 1,1 Jam.....	25
4.4 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 3,1 Jam.....	27
4.5 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 4,5 Jam.....	28
4.6 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 5 Jam.....	29
4.7 Indikator Proses <i>Refinement Highscore Plus</i>	30
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	
5.1 Kesimpulan.....	32
5.2 Saran.....	33
DAFTAR PUSTAKA	35
LAMPIRAN	
Lampiran A Perhitungan	36
Lampiran B Data Penelitian	39
Lampiran C Gambar Alat dan Bahan.....	45

DAFTAR TABEL

	Halaman
Tabel 2.1 Daftar Sistem Garam.....	9
Tabel 4.1 Perbandingan 2θ TiO_2 Hasil Eksperimen dan <i>Database</i>	20
Tabel 4.3 Perbandingan 2θ PbO Hasil Eksperimen dan <i>Database</i>	21
Tabel 4.4 Perbandingan 2θ NaCl Hasil Eksperimen dan <i>Database</i>	23
Tabel 4.5 Perbandingan 2θ KCl Hasil Eksperimen dan <i>Database</i>	23
Tabel 4.6 Data Nilai Indikator <i>Refinement</i>	31

DAFTAR GAMBAR

	Halaman
Gambar 2.1 Diaram Fasa $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$	6
Gambar 2.2 Diagram Relasi Konstanta Piezoelektrik dengan Koefisien Elektromekanik	7
Gambar 2.3 Diagram Fasa NaCl-KCl	8
Gambar 2.4 Skema Proses Sintesis <i>Molten Salt</i>	13
Gambar 3.1 Diagram Alir Percobaan	16
Gambar 4.1 Pola Difraksi Bahan Dasar <i>PZT</i>	19
Gambar 4.2 Pola Difraksi Garam NaCl dan KCl	22
Gambar 4.3 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 1,1 Jam	25
Gambar 4.4 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 3,1 Jam	27
Gambar 4.5 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 4,1 Jam	28
Gambar 4.6 Analisa Sintesis <i>PZT</i> 5 Jam	29
Gambar B.1 Sampel Hasil Pemanasan 1,1 Jam.....	40
Gambar B.2 Sampel Hasil Pemanasan 3,1 Jam.....	40
Gambar B.3 Sampel Hasil Pemanasan 4,5Jam.....	40
Gambar B.4 Sampel Hasil Pemanasan 5 Jam.....	41
Gambar B.5 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 1,1 Jam.....	41
Gambar B.6 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 3,1 Jam.....	42
Gambar B.7 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 4,5 Jam.....	42
Gambar B.8 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 5 Jam.....	43
Gambar B.9 Nilai Indikator Refinement Sampel Pemanasan 1,1 Jam.....	43

Gambar B.10 Nilai Indikator Refinement Sampel Pemanasan 3,1 Jam.....	43
Gambar B.11 Nilai Indikator Refinement Sampel Pemanasan 4,5 Jam.....	44
Gambar B.12 Nilai Indikator Refinement Sampel Pemanasan 5 Jam.....	44
Gambar C.1 Mesin <i>XRD Empyryan Panalytical</i>	46
Gambar C.2 <i>Oven</i>	46
Gambar C.3 <i>Muffle Furnace</i>	46
Gambar C.4 Neraca Digital.....	47
Gambar C.5 Mortar	47
Gambar C.6 Labu Erlenmeyer.....	47
Gambar C.7 Pemanas Air.....	47
Gambar C.8 Pipet	47
Gambar C.9 Spatula	47
Gambar C.10 Krusible Keramik.....	48
Gambar C.11 Gelas Beker.....	48
Gambar C.12 Corong Kaca	48
Gambar C.13 Serbuk NaCl.....	48
Gambar C.14 Serbuk KCl	48
Gambar C.15 Serbuk TiO ₂	48
Gambar C.16 Serbuk PbO	49
Gambar C.17 Serbuk ZrO ₂	49

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Piezoelektrik merupakan bahan padat biasanya berbentuk kristal dan keramik yang menghasilkan muatan listrik apabila terkena tekanan mekanik. Penggunaan bahan ini biasanya banyak terdapat dalam rangkaian atau komponen elektronik seperti mikrofon, printer, osilator elektronik dan bahkan digunakan sebagai pembangkit listrik berdaya rendah. Pada tahun 2008, di stasiun Tokyo dikembangkan pembangkit listrik dengan menggunakan bahan piezoelektrik. Pembangkit listrik tersebut menghasilkan energi listrik dari tekanan yang dihasilkan penumpang pada lantai yang telah diganti dengan bahan piezoelektrik. Setiap harinya stasiun ini bisa menyalakan 100 lampu di stasiun selama 8 jam tanpa suplai energi dari pembangkit listrik konvensional.

Bahan dasar untuk piezoelektrik sendiri terdiri dari berbagai macam, bahan yang biasanya paling sering digunakan adalah *barium titanate* (BaTiO), *lead zirconate titanate* (PZT), *potassium sodium niobate* (KNN). Dari ketiga bahan tersebut, *lead zirconate titanate* (PZT) dengan struktur perovskite, mempunyai performa piezoelektrik yang sangat tinggi. Hal ini disebabkan oleh terbentuknya dua fasa yaitu fasa rombohedral dan tetragonal pada material tersebut. Jika dilihat pada diagram fasa $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ material ini terletak pada titik *morphotropic phase boundary* (MPB). Pada titik tersebut koefisien elektromekanik dan konstanta piezoelektrik naik secara drastis.

Sintesis bahan PZT biasanya menggunakan beberapa metode, diantaranya adalah *solid solution reaction*, *sol-gel methode*, dan yang terbaru adalah menggunakan metode *molten salt*. Metode *molten salt* adalah salah satu metode sintesis bahan dengan menggabungkan bahan dasar dengan lelehan garam. Banyak keunggulan dari menggunakan metode ini, diantaranya adalah bisa menurunkan suhu reaksi, ramah lingkungan, serta biaya produksi yang rendah. Pada penelitian ini diharapkan dapat menghasilkan bahan PZT dua fasa dengan menggunakan metode molten salt.

1.2 Rumusan Masalah

Berikut adalah rumusan masalah dalam penelitian yang akan dilakukan :

1. Apakah proses sintesis PbO, ZrO, dan TiO₂ dapat dilakukan dengan metode *molten salt* ?
2. Bagaimanakah pengaruh variasi waktu pemanasan terhadap produk yang dihasilkan ?
3. Apakah fasa yang terbentuk berpengaruh terhadap analisa struktur yang dilakukan ?

1.3 Tujuan Penelitian

Berikut adalah tujuan penelitian yang akan dilakukan :

1. Mengetahui apakah proses sintesis PbO, ZrO₂, dan TiO₂ dapat dilakukan dengan metode *molten salt*.
2. Mengetahui pengaruh variasi waktu dan konsentrasi garam terhadap proses sintesis.

3. Mengetahui proses identifikasi atau analisa struktur bahan yang dihasilkan.

1.4 Ruang Lingkup Penelitian

Adapun ruang lingkup penelitian ini adalah :

1. Bahan baku yang digunakan adalah serbuk PbO, serbuk ZrO₂, serbuk TiO₂ garam NaCl, garam KCl, AgNO₃, etanol, dan aquades.
2. Alat yang digunakan berupa *furnace*, *crucible*, *hot magnetic stirrer*, *oven*, neraca digital, mesin *XRD*, labu erlenmeyer, gelas beker, mortar keramik, spatula, kertas saring, corong kaca, dan pipet kaca.
3. Proses sintesis ini menggunakan variabel waktu dan konsentrasi garam. Waktu yang digunakan adalah 1,1 jam, 3,1 jam, 4,5 jam, dan 5 jam dengan perbandingan konsentrasi garam dan sampel 1,6:1.
4. Proses karakterisasi sampel menggunakan *x-ray diffraction (XRD)*.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Bahan Piezoelektrik

Secara umum efek piezoelektrik bisa diartikan sebagai interaksi linear antara kuantitas mekanik dan elektrik. Ketika material piezoelektrik mendapat deformasi mekanik, secara makroskopis hal ini akan menyebabkan terjadinya polarisasi elektron. Perubahan akibat adanya deformasi mekanik menjadi kuantitas elektrik biasa disebut dengan efek piezoelektrik langsung. Sedangkan perubahan dari kuantitas elektrik menjadi mekanik disebut dengan efek piezoelektrik tidak langsung. Karena perubahan piezoelektrik langsung dan tidak langsung ini memerlukan perubahan polarisasi elektron, biasanya material piezoelektrik tidak mengandung muatan elektron bebas dan bersifat sebagai insulator.

Material piezoelektrik biasanya mempunyai struktur kristal, atau setidaknya mempunyai area seperti struktur kristal. Pemilihan material piezoelektrik bergantung pada bidang atau aplikasi yang akan digunakan. Untuk aplikasi pada sensor dan aktuator biasanya membutuhkan material yang mempunyai konstanta regang piezoelektrik (d_{ip}) dan faktor elektromekanikal *coupling* yang tinggi. Material piezoelektrik biasanya tersusun atas material dengan sistem *single crystal*, *polycrystalline ceramic materials*, dan *polymers*.

Banyak bahan piezoelektrik yang mempunyai struktur *single crystal*. Biasanya bahan ini dibagi menjadi bahan alami dan bahan buatan (sintetis). Salah satu contoh bahan alaminya adalah kuarsa, sedangkan contoh bahan buatan

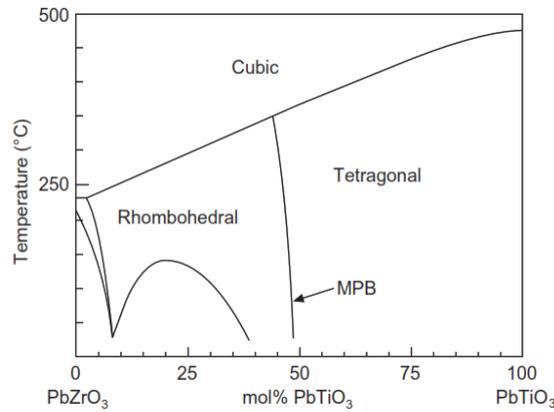
(sintetis) adalah *lithium niobate*. Selanjutnya adalah bahan piezoelektrik dengan struktur *polycrystalline*. Material ini merupakan material yang paling banyak digunakan karena mempunyai sifat piezoelektrik yang sangat baik. *Barium titanate* dan *lead zirconate titanate (PZT)* merupakan dua bahan yang diketahui mempunyai sifat piezoelektrik yang baik serta biaya yang murah. Selanjutnya juga diketahui beberapa bahan yang berasal dari *polymers* mempunyai sifat piezoelektrik yang baik setelah melalui proses aktivasi. *Polyviniliden fluoride (PVDF)* dan *cellular polypropylene* adalah dua bahan *polymer* yang diketahui mempunyai sifat piezoelektrik yang sangat baik (Ruspitsh, 2019).

2.2 Lead Zirconate Titanate

Lead zirconate titanate atau yang lebih dikenal dengan PZT mempunyai simbol $Pb(Zr_{1-x}, Ti_x)O_3$ adalah salah satu bahan piezoelektrik yang paling banyak dipelajari dan terkenal dalam satu dekade terakhir. Material ini mempunyai aplikasi yang sangat luas, seperti digunakan pada sensor, generator energi rendah atau sebagai pembangkit tenaga listrik daya rendah. Material ini mempunyai kelebihan pada sifat dielektrik, ferroelektrik, dan piezoelektrik yang sangat baik (Ahda, 2017).

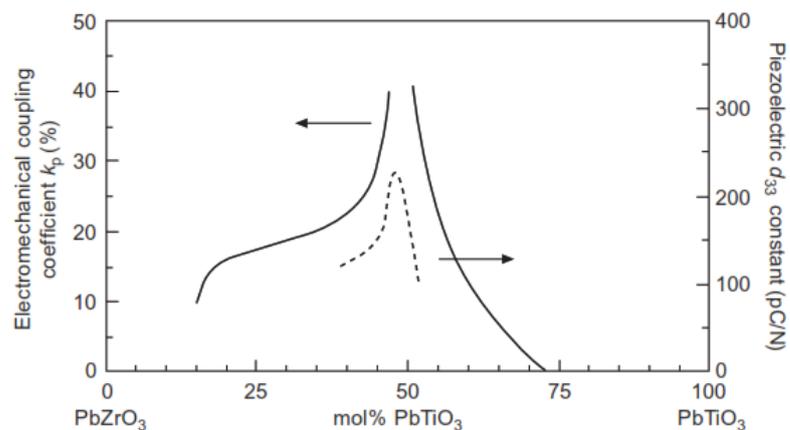
Lead zirconate titanate mempunyai struktur kristal perovskite. Struktur kristal perovskite mengindikasikan sifat material yang baik secara fungsi dielektrik, piezoelektrik, elektro-optik, semikonduktor, atau superkonduktor. Sifat-sifat ini mempunyai peranan penting dalam pengembangan bahan elektronik modern di masa depan. Jika dilihat pada diagram fasa $PbZrO_3$ - $PbTiO_3$ daerah *MPB (morphotropic phase boundary)* merupakan daerah dimana konstanta piezoelektrik

naik secara drastis. Berikut adalah diagram fasa $\text{PbZrO}_3 - \text{PbTiO}_3$ bisa dilihat pada Gambar 2.1.



Gambar 2.1 Diagram Fasa $\text{PbZrO}_3 - \text{PbTiO}_3$

Pada daerah fasa *MPB* konstanta piezoelektrik dan koefisien elektromekanik yang dihasilkan sangat tinggi. Salah satu struktur kristal *PZT* dengan fasa *MPB* adalah monoklinik. Keberadaan struktur kristal ini memicu percepatan perubahan fasa antara rombohedral dan tetragonal ketika aliran listrik masuk pada material *PZT* dengan fasa *MPB*. Hubungan antara koefisien elektromekanik dan konstanta piezoelektrik dijelaskan pada Gambar 2.2 berikut ini.



Gambar 2.2 Diagram Relasi KonstantaPiezoelektrik dengan Koefisien Elektromekanik

2.3 Proses Sintesis *Molten Salt*

Metode *molten salt* adalah salah satu dari metode untuk proses sintesis serbuk keramik. Dimana metode ini melibatkan lelehan garam sebagai media untuk reaksi konstituen biasanya berupa oksida dan karbonat. Metode *molten salt* merupakan modifikasi dari metode metalurgi serbuk (Liu *et al*, 2013). Garam dengan titik leleh rendah, ditambahkan pada reaktan kemudian dipanaskan di atas titik leleh garam yang digunakan. *Molten salt* pada awalnya digunakan sebagai zat aditif untuk meningkatkan reaksi pada kondisi padat. Penggunaan garam sebagai zat aditif ini biasanya sedikit, hanya beberapa persen dari total berat.

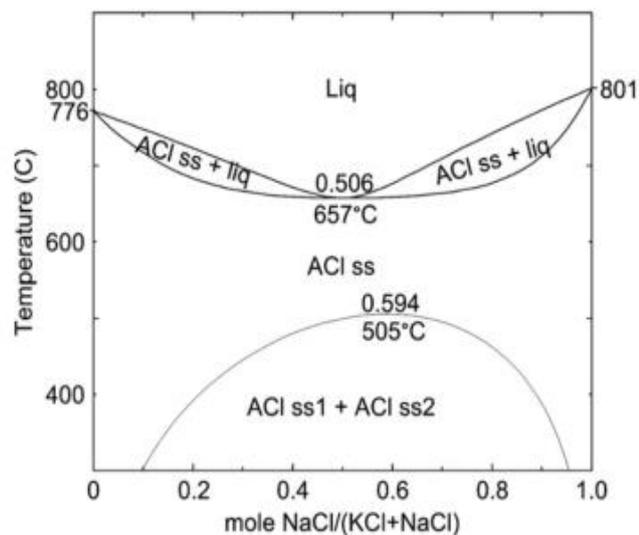
Pada sintesis *molten salt*, garam yang digunakan mempunyai jumlah yang banyak. Garam ini digunakan sebagai pelarut untuk mengontrol karakteristik bubuk bahan seperti ukuran, bentuk, susunan kristal dan lain-lain. Berikut ini adalah fungsi *molten salt* pada proses metalurgi serbuk, sebagai berikut (Kimura, 2011) :

1. Meningkatkan laju reaksi dan menurunkan temperatur reaksi.
2. Meningkatkan derajat homogenisasi pada larutan padat.
3. Mengontrol ukuran partikel.
4. Mengontrol bentuk partikel.
5. Mengontrol keadaan pada saat aglomerasi.

Syarat garam yang digunakan pada MSS diantaranya adalah stabil, mudah tersedia, murah, mudah dicuci dengan air. Mempunyai titik leleh yang rendah merupakan faktor selanjutnya bagi syarat garam MSS, selain itu garam dengan komposisi eutectic sering juga digunakan dalam MSS. Syarat selanjutnya adalah

mempunyai tekanan uap rendah pada temperatur pemanasan dan tidak menyebabkan reaksi yang tidak diinginkan (Kimura, 2011).

Sistem metode *molten salt* terbagi menjadi dua, yaitu sistem *halide* dan *oxosalts*. Pemilihan sistem ini sangat penting untuk proses sintesis dengan metode *molten salt*. Sistem *oxosalts* biasanya sistem yang banyak dipilih untuk proses sintesis baan nitrat, hidroksidam sulfat, dan karbonat (Brosto. Untuk sintesis logam oksida, membutuhkan campuran garam eutectic agar bisa menurunkan titik leleh dan membantu proses pembentukan produk. Salah satu campuran garam eutectic adalah sistem garam NaCl-KCl. Titik leleh masing-masing garam tersebut adalah 801°C dan 776°C. Pada sistem garam eutectic 0,5 NaCl-0,5 KCl titik leleh garam turun menjadi 650°C (Brostom *et al*, 2013). Hal tersebut bisa dilihat pada diagram fasa NaCl-KCl pada Gambar 2.3 berikut.



Gambar 2.3 Diagram Fasa NaCl-KCl

Berikut ini adalah data campuran garam eutectic yang biasa digunakan pada proses sintesis *molten salt*, bisa dilihat pada Tabel 2.2 di bawah.

Tabel 2.1 Daftar Sistem Garam

	Sistem Garam	Komposisi (mol %)	Titik Lebur (°C)
<i>Halides</i>	LiCl/KCl	59/41	352
	NaCl/KCl	50/50	658
	AlCl ₃ /NaCl	50/50	154
	KCl/ZnCl ₂	48/52	228
	LiF/NaF/KF	46.5/11.5/42	259
	Li/KI	63/37	286
<i>Oxosalts</i>	NaOH/KOH	51/49	170
	LiNO ₃ /KNO ₃	43/57	132
	Li ₂ SO ₄ /K ₂ SO ₄	71.6/28.4	535
	Li ₂ CO ₃ /K ₂ CO ₃	50/50	503
	Li ₂ CO ₃ /Na ₂ CO ₃	50/50	500
	NaNO ₃ /KNO ₃	50/50	228
	LiBO ₂ /KBO ₂	56/44	582
	Na ₂ SiO ₃ /K ₂ SiO ₂	18/82	753

2.4 Parameter Proses Sintesis *Molten Salt*

Pada proses sintesis dengan metode *molten salt*, terdapat beberapa parameter yang mempengaruhi keberhasilan proses sintesis, diantaranya adalah sebagai berikut :

1. Komposisi Garam

Komposisi garam mempunyai peranan penting dalam proses sintesis *molten salt*. Komposisi garam mempengaruhi terhadap ukuran partikel yang disintesis. Ketika komposisi garam terlalu sedikit, pembentukan fasa liquid akan terganggu. Ketika komposisi garam terlalu banyak, ada dua masalah yang ditimbulkan. Pertama terpisahnya partikel reaktan dan mengendap. Selanjutnya ketika garam terlalu banyak, garam akan keluar dari reaktan dan membentuk lapisan keras ada *crucible* karena reaskinya dengan alumina/SiC (Januari *et al*, 2020).

2. Temperatur Operasi

Dalam penggunaan Temperatur operasi pada proses *molten salt*, bergantung pada dua faktor yaitu Temperatur dekomposisi garam, tekanan uap garam yang digunakan. Sangat dihindari penggunaan garam yang mempunyai tekanan uap tinggi (BaCl_2 , CsI , ZnCl_2) karena akan sulit dalam mereaksikan produk. Biasanya Temperatur operasi sintesis *molten salt* berada di atas titik leleh garam yang digunakan (Kan *et al*, 2017).

3. Rasio Molar Garam-Reaktan

Faktor ini berpengaruh terhadap morfologi dari produk yang dihasilkan. Ketika rasio garam lebih banyak, akan membentuk mikrostruktur produk

yang halus dan berukuran kecil. Sebaliknya jika rasion garam lebih sedikit morfologi mikrostruktur akan berukuran besar (Chang *et al*, 2017).

4. Penghilangan dan Kelarutan Garam

Ketika proses sintesis telah selesai, produk akhir perlu dicuci untuk menghilangkan kandungan garam. Pencucian produk biasanya menggunakan aquades. Oleh sebab itu pemilihan garam yang digunakan juga harus mempunyai kelarutan yang tinggi dalam air. Dalam beberapa kasus pencucian sampel bisa dilakukan 2-3 kali untuk menghilangkan kadar garam dengan sempurna (Gupta *et al*, 2021).

2.5 Pengaruh Temperatur pada Sintesis *Molten Salt*

Telah diketahui bahwa temperatur memegang peranan penting dalam keberhasilan proses sintesis dengan metode *molten salt*. Penggunaan temperature pada proses sintesis molten salt harus di atas titik leleh dari garam yang digunakan agar reaksi dapat terjadi. Dalam beberapa penelitian terdapat temperatur optimum agar proses sintesis berhasil. Xinhua *et al* (2014), meneliti bagaimana temperature berperan penting dalam proses sintesis dengan metode *molten salt*. Garam yang digunakan dalam proses sintesis tersebut adalah NaCl-KCl. Dengan menggunakan variasi suhu 700°C, 750°C, 800°C, 900°C ada proses sintesis *bismuth ferrite* didapat temperature optimumnya adalah 800°C. Pada suhu tersebut terbentuk fasa BiFeO₃, dimana fasa tersebut merupakan fasa yang diinginkan. Ketika temperature operasi lebih rendah dari 800°C terdapat fasa pengotor yang terbentuk sedangkan ketika lebih tinggi fasa BiFeO₃ berubah menjadi fasa Bi₂Fe₄O₉.

Selanjutnya temperatur juga mempengaruhi morfologi dari struktur mikro yang dihasilkan pada produk. Semakin tinggi temperatur pemanasan yang digunakan akan semakin besar struktur mikro yang dihasilkan (Reddy *et al*, 2017). Pada penelitiannya mengenai sintesis TiO₂, titanium oxysulfat digunakan sebagai sumber Ti, dengan rasio penggunaan garam adalah 1:10. Garam yang digunakan adalah jenis garam NaNO₃ dan KNO₃. Variasi suhu operasi yang digunakan adalah 145°C, 280°C, 380°C, dan 480°C dengan lama waktu pemanasan 2 jam. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin tinggi suhu operasi maka ukuran butir yang dihasilkan akan semakin besar. Hal ini dibuktikan dengan hasil dari *scanning electron microscopy* pada sampel dengan pemanasan 480°C. Morfologi yang dihasilkan adalah ukuran butir lebih besar dibandingkan dengan sampel lain.

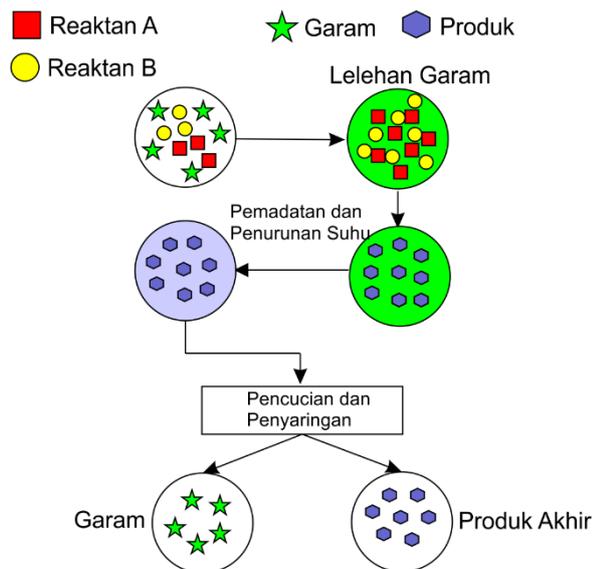
2.6 Pengaruh Waktu Tahan pada Sintesis *Molten Salt*

Selain temperatur operasi, waktu operasi juga berpengaruh terhadap keberhasilan proses sintesis. Fazli *et al*. (2014) mempelajari pengaruh waktu tahan saat pemanasan dengan metode *molten salt* pada sintesis nano CaZrO₃. Garam yang digunakan dalam sintesis ini adalah Na₂CO₃ dan CaCl₂. Kemudian menggunakan serbuk nano-ZrO₂ sebagai bahan baku. Perbandingan antara bahan baku dengan garam Na₂CO₃ dan CaCl₂ adalah 1:1:1,2 secara berurutan. Bahan baku dipanaskan pada suhu 800°C dengan variasi waktu tahan 1, 3, dan 5 jam. Kesimpulan dari penelitian tersebut adalah waktu yang optimum untuk proses pemanasan adalah selama 3 jam. Dari hasil karakterisasi XRD, proses sintesis dengan waktu tahan 3 jam menghasilkan fasa kristal tunggal CaZrO₃ tanpa adanya fasa pengotor yang

terbentuk (CaCO_3 dan ZrO_2). Sedangkan untuk waktu pemanasan 1 jam, terbentuk fasa CaZrO_3 tetapi masih terdapat fasa pengotor yang terbentuk. Sedangkan untuk waktu pemanasan 5 jam, fasa yang terbentuk sama dengan fasa yang disintesis dengan waktu tahan 3 jam dan tidak terjadi perubahan yang signifikan. Dengan alasan tersebut disimpulkan bahwa pemanasan dengan waktu tahan 3 jam merupakan waktu yang optimum karena bisa menghemat energi dan biaya lebih efektif.

2.7 Skema Proses Sintesis Molten Salt

Proses sintesis keramik dengan metode *molten salt* terdiri dari beberapa tahapan. Tahapan-tahapan tersebut diantaranya adalah pencampuran reaktan dengan garam, proses sintering pada suhu leleh garam, pendinginan, dan pencucian sekaligus pemisahan antara produk dengan garam. Tahapan-tahapan tersebut digambarkan dengan lebih jelas pada Gambar 2.4 di bawah ini.



Gambar 2.4 Skema Proses Sintesis Molten Salt

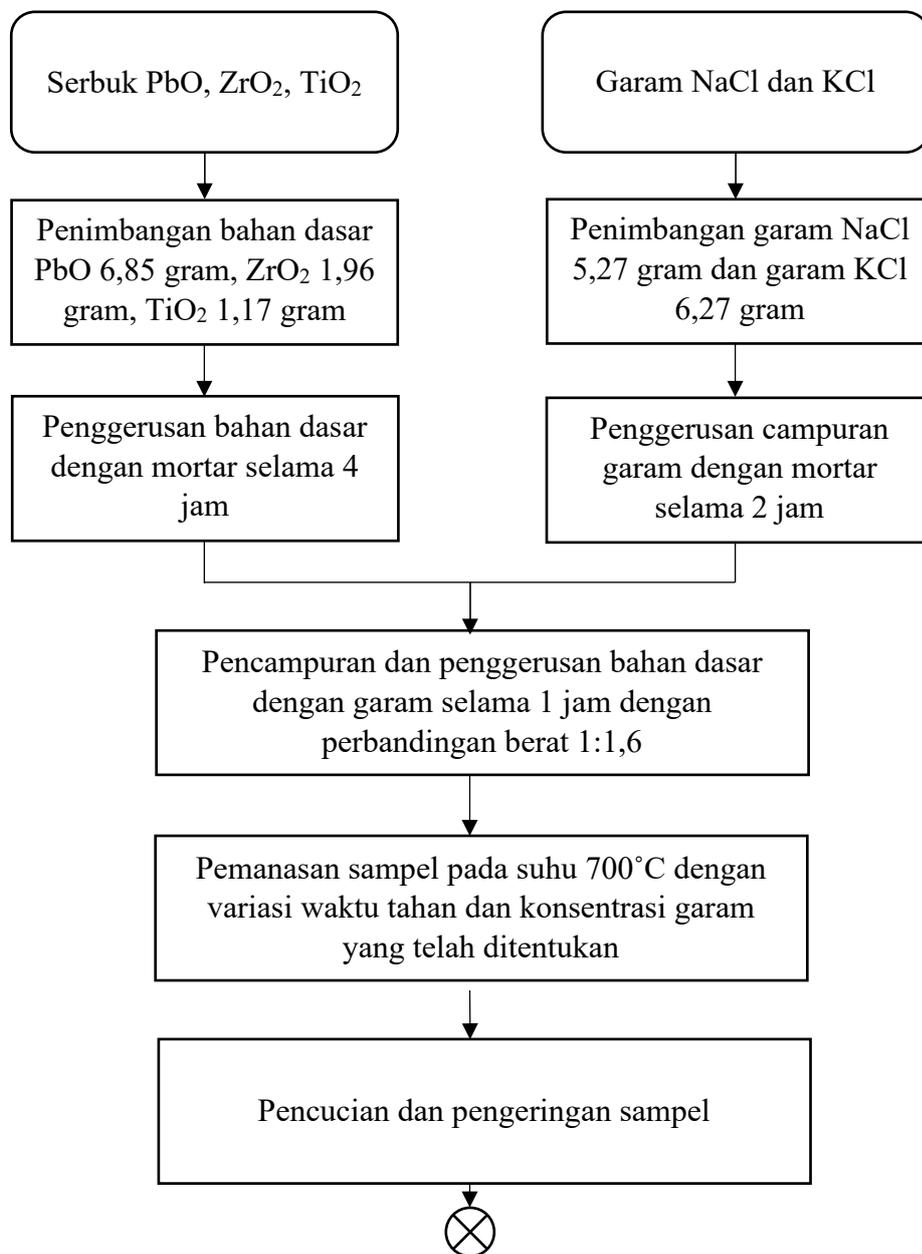
Pada tahapan awal, terjadi pencampuran reaktan dengan garam. Biasanya proses ini dilakukan setelah reaktan dan garam mengalami proses penggerusan. Hal ini dilakukan agar proses pencampuran antara reaktan dan garam terjadi secara merata atau homogen. Kemudian pada proses sintering, lelehan garam yang bercampur dengan reaktan membuat proses difusi antar reaktan terjadi. Tentunya proses difusi ini dipengaruhi oleh temperatur dan waktu proses sintering. Setelah proses sintering selesai dilakukan, kemudian dilakukan proses pendinginan. Dari proses pendinginan ini, lelehan garam dan reaktan perlahan akan mulai mengalami proses pemadatan. Setelah proses pendinginan dan pemadatan, dilakukan proses pencucian dan penyaringan untuk menghilangkan dan memisahkan antara garam dan produk akhir sintesis. Proses pencucian dan penyaringan untuk penggunaan garam NaCl-KCl biasanya menggunakan air mendidih (Ahda, 2019).

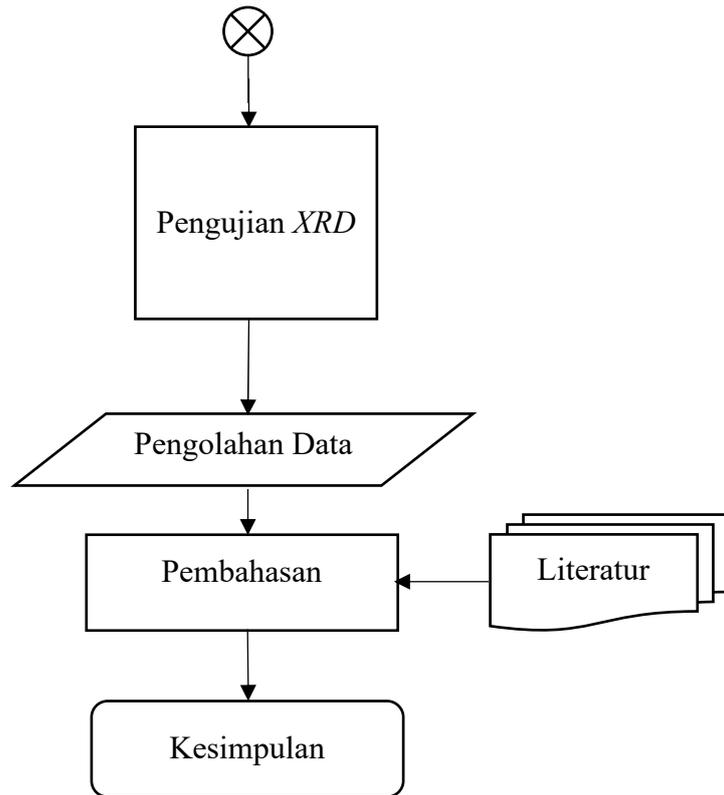
BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Diagram Alir Percobaan

Adapun tahapan proses penelitian yang dilakukan, dapat dilihat pada Gambar 3.1 berikut ini.





Gambar 3.1 Diagram alir percobaan

3.2 Alat dan Bahan

3.2.1 Alat yang digunakan

Berikut ini adalah alat-alat yang digunakan ketika melakukan percobaan:

1. Alat Uji SEM
2. Alat uji XRD Emphyrean Panalytical
3. Corong kaca
4. Gelas beker
5. Krusibel keramik
6. Labu erlenmeyer
7. Mortar
8. *Muffle Furnace*

9. Neraca digital
10. Oven Carl Korb
11. Pemanas air
12. Pipet
13. Spatula

3.2.2 Bahan yang digunakan

Berikut ini adalah alat-alat yang digunakan ketika melakukan percobaan:

1. Air
2. Garam KCl
3. Garam NaCl
4. Kertas saring
5. Larutan AgNO_3
6. Serbuk PbO
7. Serbuk TiO_2
8. Serbuk ZrO_2

3.3 Prosedur Penelitian

Berikut ini adalah prosedur penelitian yang akan dilakukan melalui tahap-tahap berikut:

1. Bahan dasar (PbO, ZrO_2 , TiO_2) dan garam (NaCl-KCl) disiapkan.
2. Bahan dasar dan garam ditimbang sesuai dengan stokiometri dan berat yang telah ditentukan. Berat PbO 6,85 gram, ZrO_2 1,96 gram, TiO_2 1,17 gram, NaCl 5,27 gram, dan KCl 6,72 gram.

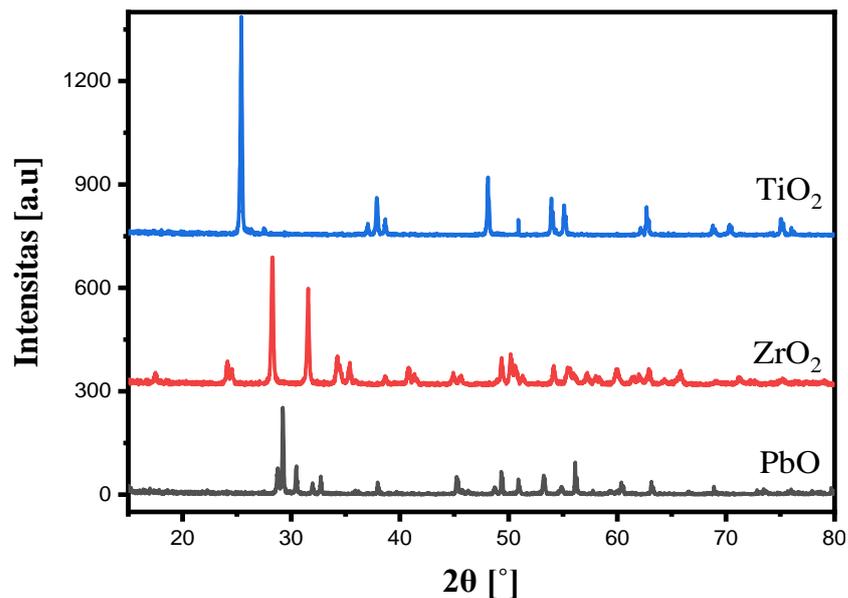
3. Bahan dasar dan campuran garam digerus secara terpisah dengan waktu masing-masing 4 jam dan 2 jam.
4. Kemudian bahan dasar dan campuran garam yang telah digerus dicampur hingga homogen, dengan perbandingan bahan dasar dan garam sebesar 1:1,6 .
5. Selanjutnya sampel yang telah dicampur, dipanaskan pada suhu 700°C dengan variasi waktu pemanasan 1,1 jam 3,1 jam, 4,5 jam, dan 5 jam.
6. Setelah proses sintering, sampel kemudian dicuci dan dikeringkan untuk memisahkan produk dengan garam.
7. Kemudian sampel dikarakterisasi dengan mesin XRD
8. Setelah itu dilakukan pengolahan data lalu pembahasan dengan berdasar pada literatur sehingga didapat kesimpulan penelitian.

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Analisa Bahan Dasar

Sebelum melakukan proses sintesis, dilakukan analisa bahan dasar yang akan digunakan. Hal ini bertujuan untuk mengetahui kemurnian dan komposisi awal bahan dasar untuk dibandingkan dengan bahan yang telah bertransformasi dari ke produk akhir sintesis (PZT). Proses analisa ini menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD). Pola difraksi bahan dasar dengan menggunakan XRD dapat dilihat pada Gambar 4.1 di bawah ini.



Gambar 4.1 Pola Difraksi Bahan Dasar PZT

Pada gambar di atas dapat dilihat pada pola difraksi bahan dasar yang didapat, terdapat banyak puncak dari yang tertinggi sampai puncak yang terendah. Hal ini menunjukkan bahwa pada bahan dasar yang digunakan masih terdapat pengotor. Hal ini lah yang kemudian menjadi acuan dalam melakukan penelitian

dimana diharapkan ada perbandingan antara proses sebelum sintesis dan proses setelah sintesis. Bahan dasar yang digunakan dalam penelitian ini akan dibandingkan dengan *database* untuk melihat seberapa murni bahan dasar tersebut. *Database* yang digunakan adalah data JCPDS dari aplikasi *Highscore Plus* untuk pengolahan data hasil *XRD*. Dalam membandingkan antara data bahan dasar dengan data dari *database* dipilih tiga puncak tertinggi sebagai perbandingan. Bisa dilihat pada perbandingan data pada Tabel 4.1 berikut ini.

Tabel 4.1 Perbandingan 2 θ TiO₂ Hasil Eksperimen dan Database

2 θ Eksperimen	2 θ JCPDS
25,39	25,28
48,01	48,05
37,93	37,80

Pada Tabel 4.1 di atas tiga titik tertinggi dari bahan TiO₂ dari hasil eksperimen cocok dengan database standar JCPDS 21-1272. Berdasarkan data di atas TiO₂ memiliki struktur kristal tetragonal dengan parameter kisi $a = b = 3,785 \text{ \AA}$, $c = 9,513 \text{ \AA}$, $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Perbandingan dari puncak hasil eksperimen dan database adalah identik, sehingga disimpulkan bahwa bahan dasar yang digunakan memiliki kemurnian yang tinggi sesuai dengan keterangan pada kemasan produk yaitu sebesar 99,99% dengan merek dagang Strem Chemical Inc. no 93-2207.

Tabel 4.2 Perbandingan 2θ ZrO_2 Hasil Eksperimen dengan Database

2θ Eksperimen	2θ JCPDS
28,32	29,55
31,56	32,98
50,24	52,47

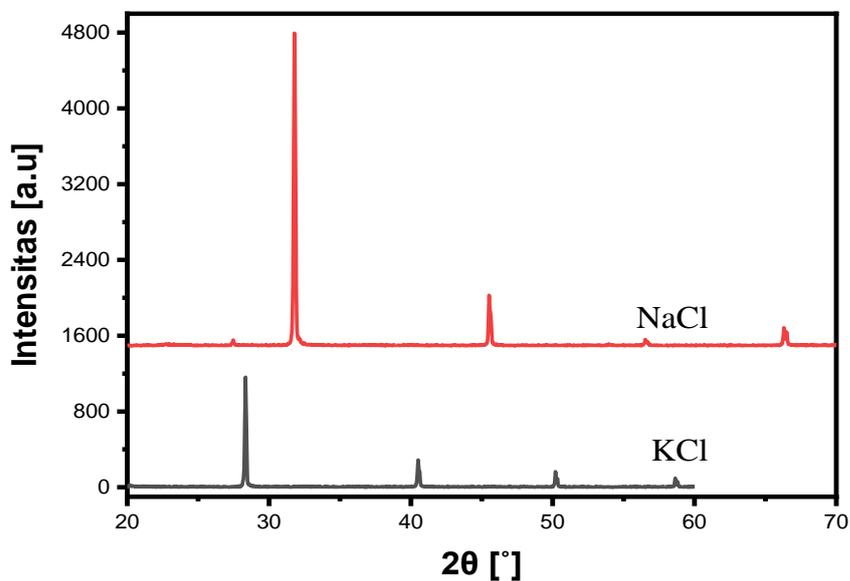
Pada Tabel 4.2 didapat tiga puncak tertinggi dari hasil *XRD* ZrO_2 hasil eksperimen dan database JCPDS No. 37-1484. Dari perbandingan data yang didapat terdapat sedikit deviasi titik puncak tertinggi antara hasil eksperimen dengan database. Tetapi deviasi titik ini masih bisa ditolerir karena tidak begitu besar. Pada hasil *XRD* juga tidak ditemukan puncak-puncak asing yang menunjukkan bahwa bahan dasar yang digunakan mempunyai tingkat kemurnian yang tinggi. Hal ini sesuai dengan seperti yang tercantum pada label bahan dasar Merck, dengan tingkat kemurnian 99,99%.

Tabel 4.3 Perbandingan 2θ PbO Hasil Eksperimen dengan Database

2θ Eksperimen	2θ JCPDS
29,22	30,20
56,10	53,11
30,46	30,40

Dari data Tabel 4.3 di atas didapat tiga puncak tertinggi dari hasil *XRD* PbO hasil eksperimen dengan database JCPDS No. 76-1796. Dari tiga puncak tertinggi yang didapat pada hasil eksperimen dan database sudut 2θ yang didapat

menunjukkan bahwa data yang didapat adalah identik. Hal ini menunjukkan bahwa bahan dasar PbO yang digunakan mempunyai tingkat kemurnian yang tinggi, didukung dengan tidak adanya puncak asing pada hasil analisa *XRD*. Data yang didapat ini menunjukkan bahwa bahan dasar yang digunakan sesuai dengan keterangan pada label bahan bahwa tingkat kemurnian yang dimiliki mempunyai kemurnian 99,99% dengan merek dagang Aldrich.



Gambar 4.2 Pola Difraksi Garam NaCl dan KCl

Pada gambar di atas adalah pola difraksi hasil *XRD* dari garam yang digunakan pada proses penelitian ini. Secara visual dapat dilihat bahwa hasil *XRD* dari garam tersebut tidak memiliki puncak-puncak asing. Hal ini menunjukkan bahwa kandungan garam tidak memiliki banyak pengotor. Data garam NaCl yang digunakan kemudiam dibandingkan dengan *database* JCPDS No. 78-0751 pada Tabel 4.4 berikut ini.

Tabel 4.4 Perbandingan 2θ NaCl Hasil Eksperimen dan Database

2θ Eksperimen	2θ JCPDS
31,78	30,91
45,52	45,08
66,32	66,98

Pada tabel di atas terdapat tiga puncak tertinggi dari masing-masing data. Pada puncak tertinggi pertama terdapat perbedaan antara sudut 2θ eksperimen dan sudut 2θ *database*. Pada sudut 2θ eksperimen didapat nilai sebesar $31,78^\circ$ dan pada sudut 2θ *database* sebesar $30,91^\circ$. Kemudian puncak pada sudut 2θ eksperimen yang kedua nilai 2θ yang didapat adalah sebesar $45,52^\circ$ dan pada 2θ *database* adalah $45,08^\circ$. Pada sudut tertinggi terakhir sudut 2θ eksperimen adalah $66,32^\circ$ dan sudut 2θ *database* adalah $66,98^\circ$.

Tabel 4.5 Perbandingan 2θ KCl Hasil Eksperimen dan Database

2θ Eksperimen	2θ JCPDS
28,34	29,26
40,51	41,34
50,21	51,17

Dari perbandingan data pada Tabel 4.5 di atas, didapat tiga puncak tertinggi pada bahan dasar garam KCl yang digunakan dan dari *database* JCPDS No. 41-1476. Jika dibandingkan dengan grafik hasil XRD pada Gambar 4.2 tidak terdapat puncak-puncak asing selain 3 puncak tertinggi yang telah ditetapkan. Pada puncak tertinggi pertama 2θ eksperimen mempunyai nilai $28,34^\circ$ sedangkan 2θ

database sebesar 29,26°. Kemudian pada puncak kedua, sudut 2θ eksperimen mempunyai nilai 40,51° dan sudut 2θ *database* sebesar 41,34°. Terakhir pada sudut 2θ eksperimen mempunyai nilai sebesar 50,21° dan pada sudut 2θ *database* 51,17°. Hal ini menunjukkan bahwa kemurnian bahan dasar memiliki kemurnian yang tinggi sesuai dengan spesifikasi yang diterangkan pada kemasan yaitu sebesar 99,99% dengan merk dagang Aldrich.

4.2 Sintesis PZT dengan Metode Molten Salt

PZT disintesis dari bahan dasar PbO, ZrO₂, dan TiO₂ dengan bantuan garam NaCl dan KCl. Sebelum dilakukan sintesis bahan dasar dilakukan perhitungan stoikiometri seperti pada persamaan berikut ini :



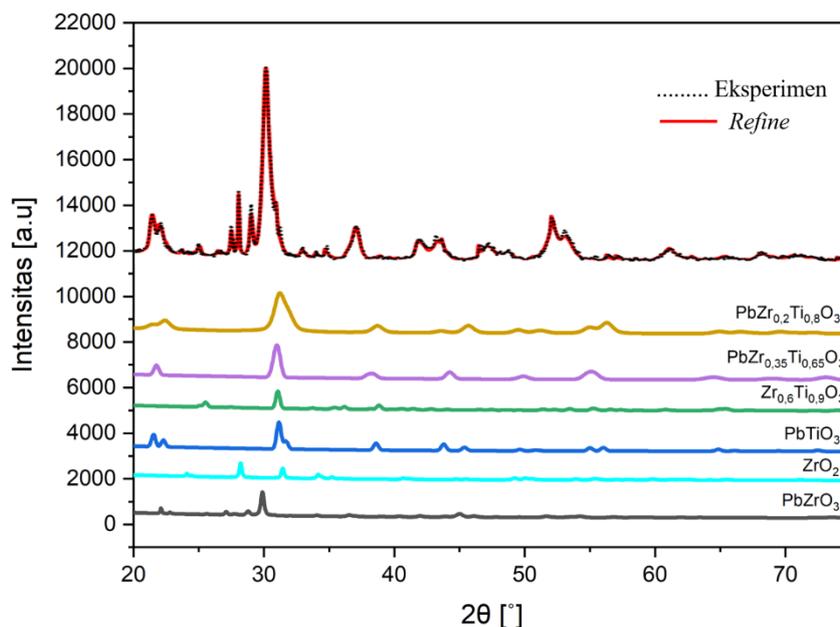
Proses awal dalam sintesis PZT ini adalah menyiapkan bahan dasar dan garam yang akan digunakan. Bahan dasar PbO, ZrO₂, dan TiO₂ ditimbang sesuai dengan perhitungan yang telah dilakukan. Kemudian bahan dasar tersebut dicampur dan digerus selama 4 jam. Hal ini dilakukan agar bahan dasar tersebut bisa tercampur dengan baik. Proses penggerusan dan pencampuran bahan dasar sangat berpengaruh terhadap produk akhir yang dihasilkan (Ahda, Syhafandi, dkk., 2019).

Kemudian garam NaCl dan KCl diberi perlakuan yang sama seperti pada bahan dasar. Setelah proses penggerusan garam selesai, kemudian garam dan bahan dasar digerus hingga tercampur dengan baik. Homogenitas antara bahan dasar dan garam adalah faktor penting dalam proses sintesis dengan metode *molten salt*. Garam pada proses ini berfungsi sebagai media sekaligus katalis reaksi pada bahan dasar. Selain itu garam juga berperan penting dalam menurunkan suhu reaksi antara

bahan dasar.

Pada proses sintesis bahan PZT dilakukan 4 variasi waktu pemanasan yaitu selama 1,1 jam, 3,1 jam, 4,5 jam, dan 5 jam pada suhu 700°C. Pada proses pemanasan dilakukan penahanan temperatur pada suhu 200°C terlebih dahulu selama 30 menit. Hal ini dilakukan untuk menghilangkan kadar air pada bahan dasar agar tidak mempengaruhi produk akhir yang dihasilkan. Setelah itu suhu dinaikan secara berkala hingga 700°C dan dilakukan proses pemanasan sesuai dengan waktu yang telah ditentukan. Setelah proses pemanasan selesai, *furnace* didinginkan sampai suhu ruang. Setelah itu bahan dasar akan dicuci dengan air panas yang bertujuan untuk menghilangkan kandungan garam yang tercampur pada bahan dasar. Setelah proses pencucian selesai produk akhir dari proses sintesis kemudian di karakterisasi menggunakan mesin *XRD*.

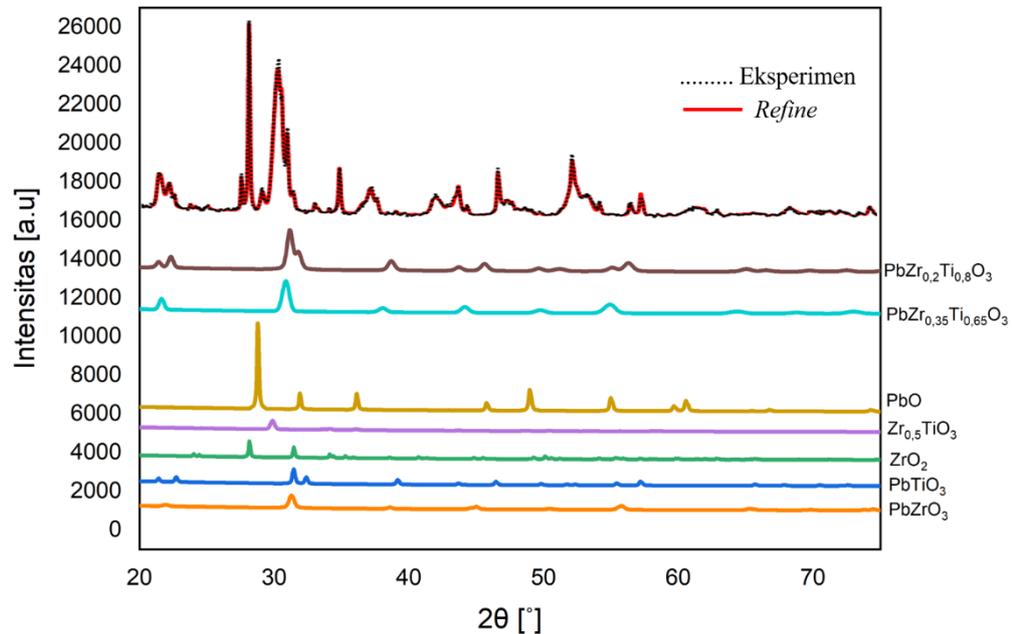
4.3 Analisa Sintesis PZT 1,1 Jam



Gambar 4.3 Grafik *XRD* Hasil Sintesis 1,1 Jam

Pada Gambar 4.1 disajikan data hasil sintesis bahan dasar PZT dengan waktu 1,1 jam. Berdasarkan grafik tersebut PZT sudah berhasil terbentuk tetapi masih banyak mengandung konstituen lain. Hal ini disebabkan karena masih belum optimalnya waktu reaksi yang dibutuhkan oleh bahan dasar untuk membentuk produk akhir yang diinginkan. Terdapat bahan pengotor yang masih dominan pada hasil sintesis dengan waktu 1,1 jam, diantaranya adalah $Zr_{0,6}Ti_{0,9}O_3$, $PbTiO_3$, ZrO_2 , dan $PbZrO_3$. Bahan-bahan tersebut merupakan bahan dasar yang belum bereaksi secara sempurna karena waktu reaksi yang singkat. Pada sisi lain terdapat bahan dasar yang berhasil membentuk $PbZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$ dan $PbZr_{0,35}Ti_{0,65}O_3$ dengan sistem kristal masing-masing adalah tetragonal dan kubik. Persentase berat dari senyawa yang terbentuk tersebut masing-masing adalah 31,3% dan 24,9%. Setelah diolah dengan *software Highscore Plus* kedua senyawa *PZT* cocok dengan database JCPDS 96-150-1516 dan JCPDS 96-210-2947. Pembentukan *PZT* ini bisa terjadi karena adanya sebagian bahan dasar yang bereaksi secara sempurna di dalam lelehan garam. Diketahui bahwa pada campuran garam NaCl dan KCl suhu lelehnya adalah $650^{\circ}C$. Hal ini menyebabkan sebagian bahan dasar dan garam yang tercampur secara sempurna bisa bereaksi membentuk *PZT*.

4.4 Analisa Sintesis PZT 3,1 Jam

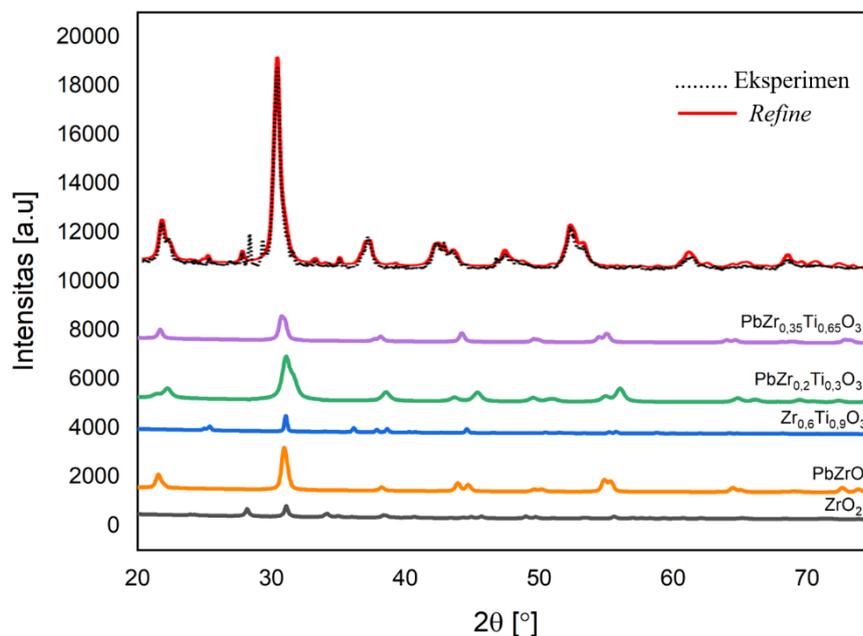


Gambar 4.4 Grafik XRD Hasil Sintesis 3,1 Jam

Kemudian pada hasil sintesis dengan waktu 3,1 jam, produk PZT sudah terbentuk. Pada hasil sintesis dengan waktu 3,1 jam produk pengotor yang terbentuk lebih banyak dibandingkan dengan waktu sintesis 1,1 jam. Kemudian intensitas puncak PZT yang terbentuk juga lebih rendah. Pada hasil analisa dengan XRD masih terdapat bahan dasar yang belum bereaksi sempurna. Ada dua bahan dasar yang masih belum bereaksi yaitu PbO dan ZrO₂. Hal ini terlihat dari grafik dimana puncak PbO lebih tinggi dibandingkan dengan puncak dari produk akhir PbZr_{0,2}Ti_{0,8}O₃ dan PbZr_{0,35}Ti_{0,65}O₃. Senyawa PbZr_{0,2}Ti_{0,8} mempunyai sistem kristal tetragonal dan senyawa PbZr_{0,35}Ti_{0,65}O₃ mempunyai sistem kristal kubik. Senyawa yang terbentuk cocok dengan *database* JCPDS 96-150-1516 dan JCPDS 96-210-2946. Persentase berat kedua senyawa tersebut setelah diolah dengan *software Highscore Plus* didapat masing-masing sebesar 16,9% dan 16,9%. Persentase PZT

yang terbentuk terbilang kecil jika dibandingkan persentase berat pengotor. Kegagalan bereaksinya bahan dasar pada proses sintesis bisa disebabkan oleh dua faktor, yaitu bahan dasar dan garam tidak homogen, serta masuknya pengotor dari lingkungan saat proses pemanasan (Zulhijah, 2017).

4.4 Analisa Sintesis PZT 4,5 Jam

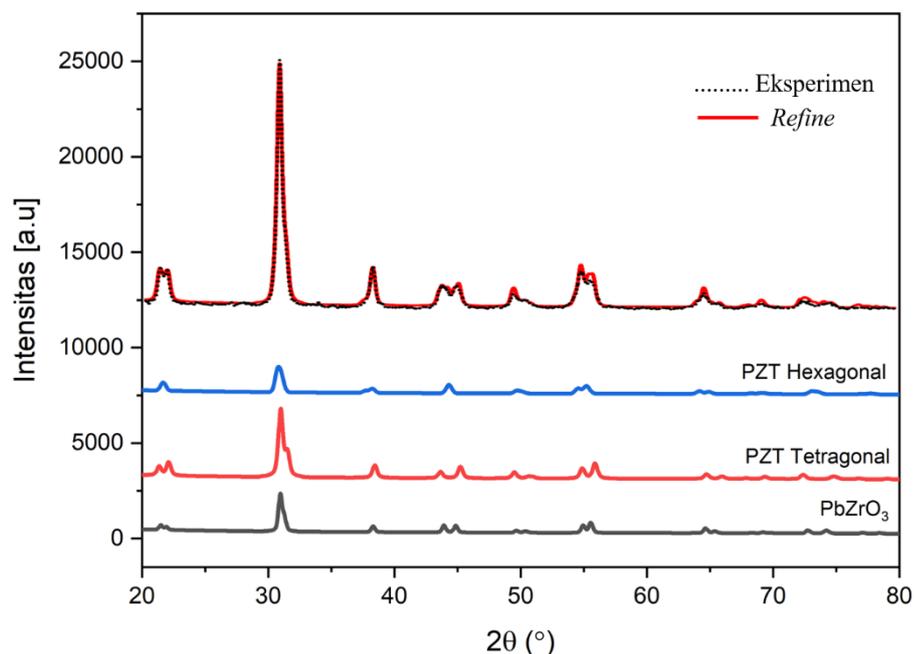


Gambar 4.5 Grafik XRD Hasil Sintesis 4,5 Jam

Pada proses sintesis dengan waktu 4,5 jam produk PZT berhasil terbentuk dan pengotor yang dihasilkan menurun jika dibandingkan dengan proses sintesis dengan waktu 1,1 jam dan 3,1 jam. Jika dilihat pada grafik hasil eksperimen dan grafik hasil refinement puncak-puncak asing yang terbentuk sudah menurun. Adapun puncak yang masih dianggap pengotor intensitasnya tidak terlalu tinggi. Produk PZT yang dihasilkan adalah PbZr_{0,35}Ti_{0,65}O₃ dan PbZr_{0,3}Ti_{0,8}O₃ dengan sistem kristal masing-masing adalah tetragonal dan hexagonal. Pada proses sintesis

ini $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$ dan $\text{PbZr}_{0,3}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ yang dihasilkan cocok dengan *database* JCPDS 96-210-2946 dan JCPDS 96-150-1516. Setelah diolah dengan *software Highscore Plus* persentase berat dari $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$ dan $\text{PbZr}_{0,3}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ masing-masing adalah 52,6% dan 42,3%.

4.5 Analisa Sintesis PZT 5 Jam



Gambar 4.5 Grafik XRD Hasil Sintesis 5 Jam

Dari hasil percobaan dengan waktu pemanasan 5 jam didapat dua produk *PZT* yaitu $\text{Pb}_6\text{Ti}_{3,9}\text{O}_{18}$ dan $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ yang mempunyai sistem kristal hexagonal dan tetragonal. Persentase berat $\text{Pb}_6\text{Ti}_{3,9}\text{O}_{18}$ dan $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ yang didapat dari proses pemanasan selama 5 jam sebesar 18,8% dan 59,6%. Pada proses pemanasan 5 jam terdapat pengotor berupa PbZrO_3 dengan persentase berat sebesar 21,6%. Setelah diolah dengan *software Highscore Plus* data $\text{Pb}_6\text{Ti}_{3,9}\text{O}_{18}$ dan $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ cocok dengan *database* JCPDS 96-210-2946 dan JCPDS 96-150-1516. Dalam

proses pemanasan selama 5 jam, produk pengotor yang dihasilkan berkurang secara signifikan dibandingkan dengan waktu pemanasan sebelumnya.

4.6 Indikator Proses *Refinement Highscore Plus*

Data dalam penelitian ini diolah dan dianalisa menggunakan *software Highcore Plus* melalui metode *Rietveld Refinement Process*. Keberhasilan analisa dengan proses *refinement* ditentukan oleh nilai R_p (*Profile Factor*) dan R_{wp} (*Weight Profile Factor*). Kedua nilai tersebut menunjukkan perbandingan antara data hasil uji coba dengan data hasil analisa. Kemudian nilai R_p dan R_{wp} harus mencapai nilai R_{exp} (*the expected value of the error*) yang menunjukan apakah data yang diolah bisa diterima atau tidak. Nilai dari R_{wp} yang bisa diterima adalah 2-10%. Selain itu terdapat indikator *GoF (Goodness of Fit)* dimana ini menunjuka kecocokan antara puncak yang dihasilkan dari data percobaan dan data hasil pengolahan. Semakin rendah nilai *GoF* maka kecocokan data akan semakin baik (Knless, C.T., dkk, 2012).

Dalam pengolahan data hasil peneltian ini didapat beberapa nilai dari indikator yang telah disebutkan untuk setiap sampel percobaan. Data tersebut dapat dilihat pada Tabel 4.6 berikut ini.

Tabel 4.6 Data Nilai Indikator *Refinement*

Waktu Pemanasan	GoF	R _{wp} (%)	R _{exp}	R _p
1,1 Jam	3,7	7,9	9,8	4,1
3,1 Jam	1,8	5,6	4,1	7,9
4, 5 Jam	4,9	9,6	4,3	7,8
5 Jam	2,5	7	4,3	5,5

Dari tabel di atas dapat dilihat sampel dengan waktu pemanasan 4,5 jam mempunyai nilai GoF terbesar yaitu 4,9 sedangkan sampel dengan waktu pemanasan 1,1 jam mempunyai nilai GoF 3,7 lalu sampel dengan waktu pemanasan 5 jam mempunyai nilai GoF 2,5 dan sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam mempunyai nilai GoF terkecil yaitu 1,8. Kemudian untuk nilai R_{wp} nilai tertinggi dimiliki oleh sampel dengan waktu pemanasan 9,6% lalu sampel dengan waktu pemanasan 1,1 jam sebesar 7,9%, sampel dengan pemanasan 5 jam mempunyai nilai R_{wp} sebesar 7% dan nilai R_{wp} terkecil dimiliki oleh sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam.

Kemudian sampel dengan waktu pemanasan 1,1 jam mempunyai nilai R_{exp} sebesar 9,8 lalu sampel dengan waktu pemanasan 4,5 jam dan 5 jam sebesar 4,3 dan sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam mempunyai nilai R_{exp} sebesar 4,1. Untuk nilai R_p sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam mempunyai nilai 7,9 kemudian sampel dengan waktu pemanasan 4,5 jam mempunyai nilai R_p 7,8 selanjutnya sampel dengan waktu pemanasan 5 jam mempunyai nilai R_p sebesar 5,5 dan sampel terakhir dengan waktu pemanasan 1,1 jam mempunyai nilai R_p sebesar 4,1.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Dari hasil penelitian yang dilakukan didapat beberapa kesimpulan, berikut ini diantaranya :

1. Proses sintesis PbZrTiO_3 dapat dilakukan dengan metode *molten salt*. Pada hasil pemanasan dengan waktu 1,1 jam didapat persentase $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ dan $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$ yang terbentuk sebanyak 31,3% dan 24,9%. Kemudian pada proses pemanasan sampel selama 3,1 jam terbentuk $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ dan $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$ dengan persentase sebanyak 16,9% dan 16,9%. Lalu pada proses pemanasan sampel selama 4,5 jam terbentuk $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$ dan $\text{PbZr}_{0,3}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ dengan persentase 52,6% dan 42,3%. Terakhir sampel dengan waktu pemanasan 5 jam menghasilkan $\text{Pb}_6\text{Ti}_{3,9}\text{O}_{18}$ dan $\text{PbZr}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ dengan persentase masing-masing sebesar 18,8% dan 59,6%.
2. Pengaruh waktu pemanasan terhadap produk *PZT* yang dihasilkan setelah dilakukan analisa adalah semakin panjang waktu pemanasan maka pembentukan produk *PZT* semakin baik. Hal ini ditandai dengan berkurangnya produk pengotor pada sampel dengan pemanasan 5 jam jika dibandingkan dengan produk pengotor pada tiga sampel lainnya.
3. Proses analisa struktur pada setiap fasa yang terbentuk tidak mengalami perbedaan. Meskipun pada setiap sampel dengan waktu pemanasan

yang berbeda menghasilkan senyawa yang berbeda, proses analisa tetap memperhatikan faktor-faktor yang berpengaruh pada proses *rietveld refinement*. Faktor-faktor yang berpengaruh pada proses *rietveld refinement* pada aplikasi *highscore plus* diantaranya adalah faktor instrumentasi, faktor *peak profile* dan faktor okupansi atom.

5.2 Saran

Berikut ini adalah saran agar penelitian ini bisa dilakukan lebih baik lagi kedepannya :

1. Untuk proses penggerusan bahan dasar, garam, dan campuran keduanya diusahakan untuk dilakukan sampai tercampur dengan baik. Hal ini bertujuan agar proses reaksi berjalan baik.
2. Menjaga lingkungan dalam *furnace* agar tetap bersih dan terhindar dari pengotor yang bisa mengganggu proses sintesis.
3. Pada saat proses pendinginan sebaiknya dilakukan dengan menambahkan gas argon agar produk yang telah terbentuk terhindar dari zat pengotor lain.

DAFTAR PUSTAKA

S.J. Ruspitch, *Piezoelectrics Sensors and Actuator*; Springer, Germany, 2019.

Liu X, Fechler N, Antonietti M., Salt Melt Synthesis Of Ceramics, *Semiconductors And Carbon Nanostructures*, **42**:8237–65, 2013.

Kimura, Toshio., Molten Salt Synthesis Of Ceramic Powders, *Advances In Ceramics Synthesis And Characterization Processing And Specific Applications*, p.75–100, Doi:10.5772/20472, 2011.

Broström, Markus, Sonja Enestam, Rainer Backman, and Kari Mäkelä, Condensation in the KCl-NaCl System, *Fuel Processing Technology* **105**: 142–48. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2011.08.006>, 2013.

Januari, T., N. Aini, H. Barroroh, and A. Prasetyo, The Effect of Synthesis Time to Particle Size of Bi₄Ti₃O₁₂ Which Synthesized Using Molten Single Salt NaCl Method, *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science* **456** (1). <https://doi.org/10.1088/1755-1315/456/1/012013>, 2020.

Kan, Xiaoqing, Jun Ding, Hongxi Zhu, Chengji Deng, and Chao Yu, Low Temperature Synthesis of Nanoscale Titanium Nitride via Molten-Salt-Mediated Magnesiothermic Reduction, *Powder Technology*, **315**: 81–86, 2017.

Chang, Yunfei, Jie Wu, Minmin Zhang, Elizabeth Kupp, and Gary L, Molten Salt Synthesis of Morphology Controlled α -Alumina Platelets, *Ceramics International* **43** (15): 12684–88, 2017.

Gupta, Santosh K, and Yuanbing Mao, “A Review on Molten Salt Synthesis of Metal Oxide Nanomaterials: Status, Opportunity, and Challenge.” *Progress in Materials Science*, Elsevier, <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2020.100734>, 2021.

Zhu, Xinhua, Jun Zhou, Mengchao Jiang, Jun Xie, Shuang Liang, Shuyi Li, Zidong Liu, Yingying Zhu, Jianmin Zhu, and Zhiguo Liu, “Molten Salt Synthesis of Bismuth Ferrite Nano- And Microcrystals and Their Structural Characterization”, *Journal of the American Ceramic Society* **97**(7):2223–32, <https://doi.org/10.1111/jace.12897>, 2014.

Reddy, M. V., T. Y. Aloysius Chan, and S. Adams, “Effect of Molten Salt Synthesis Temperature on TiO₂ and Li Cycling Properties”, *Journal of Solid State Electrochemistry* **22** (2): 429–39. <https://doi.org/10.1007/s10008-017-3756-3>, 2018.

Fazli, Rahman, and F. Golestani-Fard, “The Effects of Processin Parameters on Molten Salt Synthesis of CaZrO₃ Nano-Powders Using Oxide Precursors”, *Powder Technology* **257**: 149–55, <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2014.02.058>, 2014.

Ahda, Syahfandi, Mardiyanto, Taufiq, Agus, Silalahi, Marzuki, Sintesa Serbuk Keramik PbZr_{0,52}Ti_{0,48}O₃ dan PbZr_{0,58}Ti_{0,42}O₃ Dengan Metode *Molten Salt* dan Analisa Produk Intermediatnya, 2019.

Ahda, Syahfandi., Mardiyanto, and Parikin, Synthesis, Structural Analysis, and Initial Scratching on PbZr_xTi_(1-x)O₃ Piezoelectric Material, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 2018.

LAMPIRAN A
PERHITUNGAN

A.1 Perhitungan Pembuatan Garam

Total berat NaCl + KCl = 12 gram

Ar Na = 22,989769

Ar K = 39,0983

Ar Cl = 35,453

$$\text{Berat NaCl} = \frac{58,442769}{58,442769+74,5513} \times 12 \text{ gram} = 5,27326 \text{ gram}$$

$$\text{Berat KCl} = \frac{74,5513}{74,5513+58,442769} \times 12 \text{ gram} = 6,72673 \text{ gram}$$

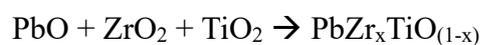
A.2 Perhitungan Pembuatan Bahan Dasar PbO, ZrO₂, dan TiO₂

Ar Pb = 207,2 Mr PbO = 223,199 mol PbO = 1 mol

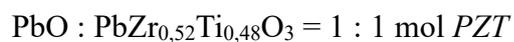
Ar Zr = 91,224 Mr ZrO₂ = 123,222 mol ZrO₂ = 0,52 mol

Ar Ti = 47,867 Mr TiO₂ = 79,865 mol TiO₂ = 0,48 mol

Ar O = 15,999 Mr PZT = 325,609 mol PZT = 1 mol



Nilai x = (0 ≤ x ≤ 1)



1 : 0,52 : 0,48

A.3 Perhitungan Pembuatan Bahan Dasar 10 gram

$$\text{mol } PZT = \frac{10}{325,609} = 0,030712$$

$$\text{mol PbO} = \frac{1}{1} \times 0,030712 = 0,030712$$

$$\text{mol ZrO}_2 = \frac{0,52}{1} \times 0,030712 = 0,01597$$

$$\text{mol TiO}_2 = \frac{0,48}{1} \times 0,030712 = 0,014742$$

$$\text{Berat PbO} = 0,030712 \times 223,199 = 6,854803 \text{ gram}$$

$$\text{Berat ZrO}_2 = 0,01597 \times 123,222 = 1,967861 \text{ gram}$$

$$\text{Berat TiO}_2 = 0,014742 \times 79,865 = 1,177336 \text{ gram}$$

$$\text{Total Berat PbO} + \text{ZrO}_2 + \text{PbO} + \text{TiO}_2 = 10 \text{ gram}$$

LAMPIRAN B
DATA PENELITIAN

B.1 Data Sampel Hasil Pemanasan



Gambar B.1 Sampel Hasil Pemanasan 1,1 Jam



Gambar B.2 Sampel Hasil Pemanasan 3,1 Jam

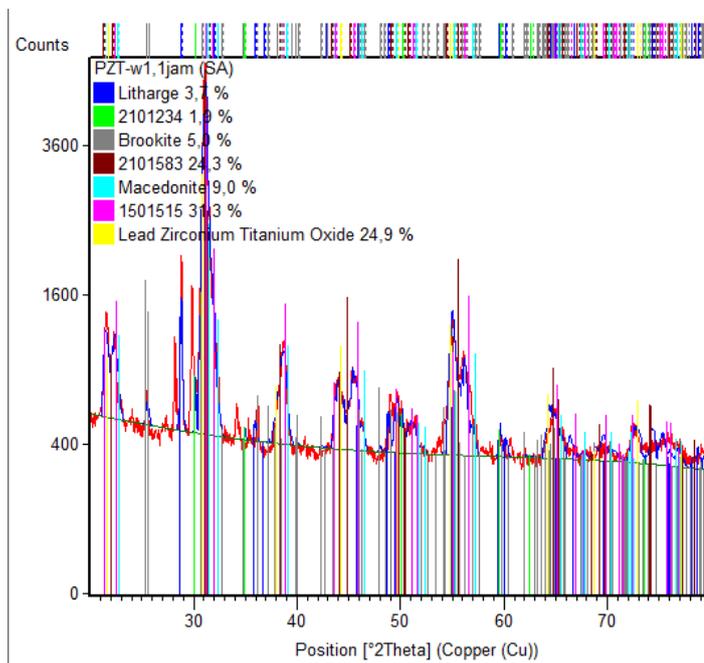


Gambar B.3 Sampel Hasil Pemanasan 4,5 Jam

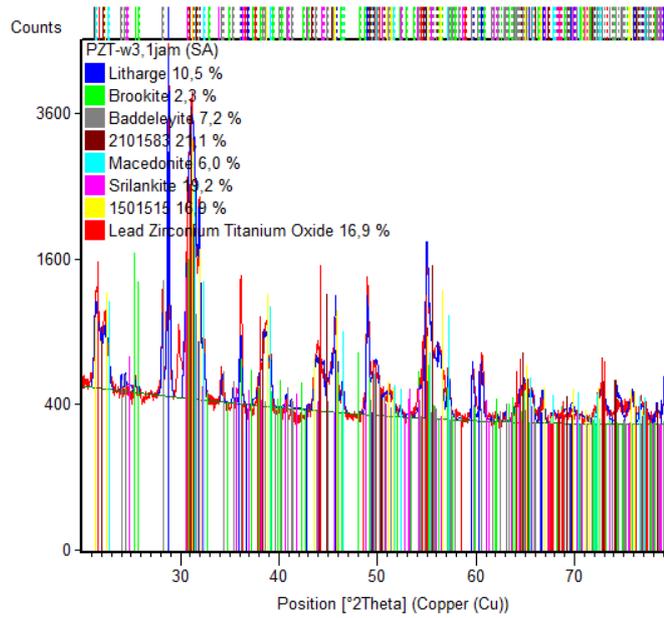


Gambar B.3 Sampel Hasil Pemanasan 4,5 Jam

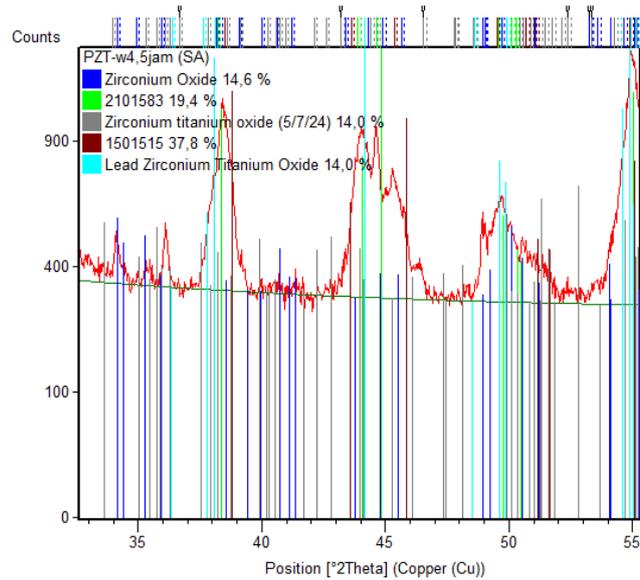
B.2 Data Analisa Hasil Pengolahan *Highscore Plus*



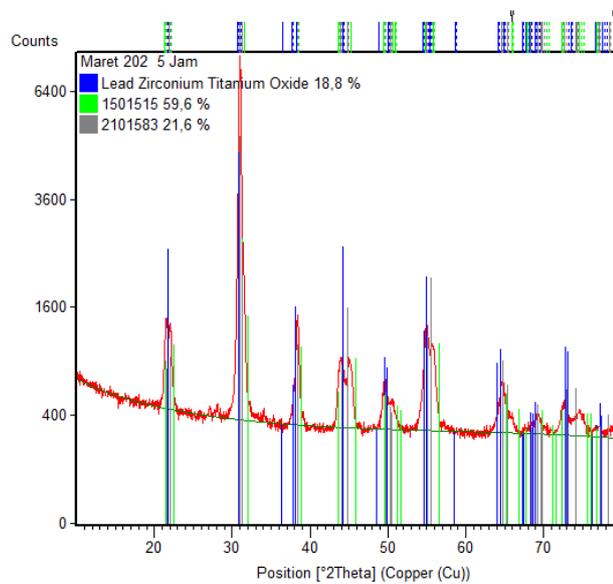
Gambar B.4 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 1,1 Jam



Gambar B.5 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 3,1 Jam



Gambar B.6 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 4,5 Jam



Gambar B.7 Hasil Analisa Sampel Pemanasan 5 Jam

Agreement Indices	
Condition Number	7302997000000
R expected	4,16241
R profile	9,86985
Weighted R profile	14,39937
D-statistics	0,17507
Weighted D-statistics	12,79806
Goodness of Fit	11,96736

Gambar B.8 Nilai Indikator *Refinement* Sampel dengan Pemanasan 1,1 Jam

Agreement Indices	
Condition Number	118894900000000
R expected	4,19404
R profile	7,95485
Weighted R profile	10,72597
D-statistics	0,30329
Weighted D-statistics	18,42715
Goodness of Fit	6,54046

Gambar B.8 Nilai Indikator *Refinement* Sampel dengan Pemanasan 3,1 Jam

Agreement Indices	
Condition Number	1,837155E21
R expected	4,32581
R profile	6,68972
Weighted R profile	9,67001
D-statistics	0,23265
Weighted D-statistics	20,20569
Goodness of Fit	4,99712

Gambar B.8 Nilai Indikator *Refinement* Sampel dengan Pemanasan 4,5 Jam

Agreement Indices	
Condition Number	4,697854E18
R expected	4,37188
R profile	5,54115
Weighted R profile	7,00443
D-statistics	0,40541
Weighted D-statistics	79,27265
Goodness of Fit	2,5669

Gambar B.8 Nilai Indikator *Refinement* Sampel dengan Pemanasan 5 Jam

LAMPIRAN C
GAMBAR ALAT DAN BAHAN

C.1 Gambar Alat dan Bahan



Gambar C.1 Mesin *XRD Empyryan Panalytical*



Gambar C.2 *Oven*



Gambar C.3 *Muffle Furnace*



Gambar C.4 Neraca Digital



Gambar C.5 Mortar



Gambar C.6 Labu Erlenmeyer



Gambar C.7 Pemanas Air



Gambar C.8 Pipet



Gambar C.9 Spatula



Gambar C.10 Krusibel Keramik



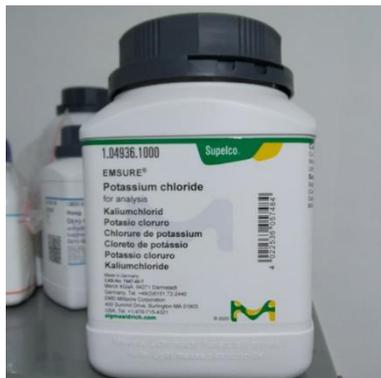
Gambar C.11 Gelas Beker



Gambar C.12 Corong Kaca



Gambar C.13 Serbuk NaCl



Gambar C.14 Serbuk KCl



Gambar C.15 Serbuk TiO₂

