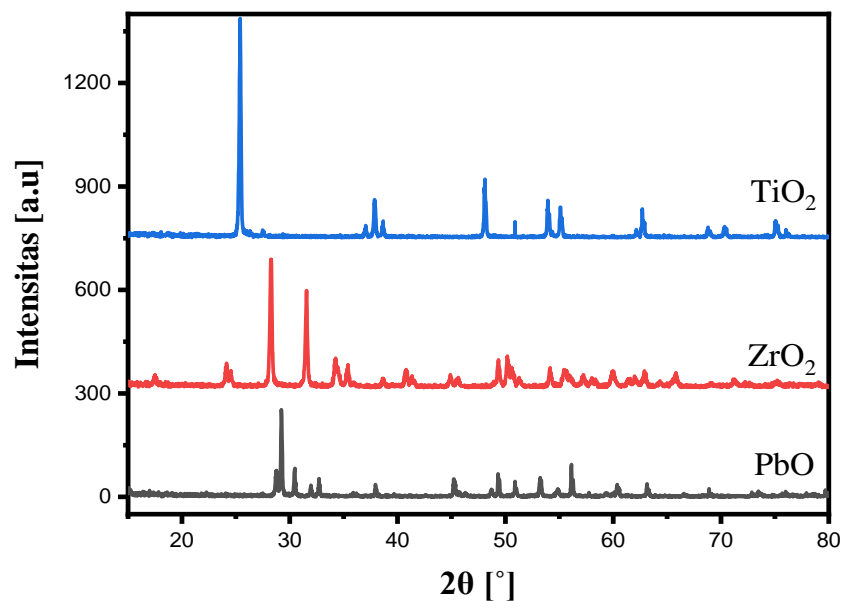


## BAB IV

### 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  $2\theta$  TiO<sub>2</sub> Hasil Eksperimen dan Database

2 $\theta$ Eksperimen	2 $\theta$ JCPDS
25,39	25,28
48,01	48,05
37,93	37,80

Pada Tabel 4.1 di atas tiga titik tertinggi dari bahan TiO<sub>2</sub> dari hasil eksperimen cocok dengan database standar JCPDS 21-1272. Berdasarkan data di atas TiO<sub>2</sub> 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  $2\theta$   $ZrO_2$  Hasil Eksperimen dengan Database

$2\theta$ Eksperimen	$2\theta$ JCPDS
28,32	29,55
31,56	32,98
50,24	52,47

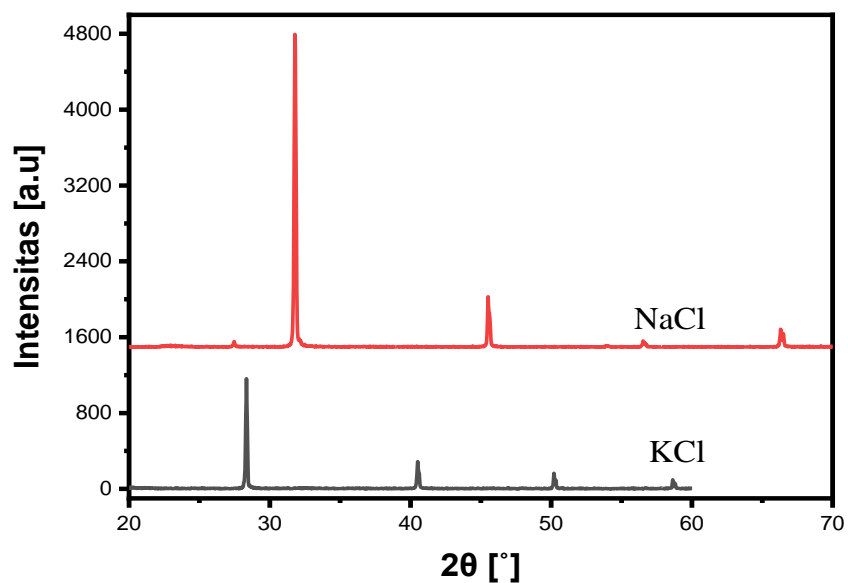
Pada Tabel 4.2 didapat tiga puncak tertinggi dari hasil *XRD*  $ZrO_2$  hasil eksperimen dan database JCPDS No. 37-1484. Dari perbandingan data yang didapat terdapat sedikit deviasi titik puncak tertinggi antara hasil eksperimen dengan database. Tetapi deviasi titik ini masih bisa ditolerir karena tidak 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  $2\theta$   $PbO$  Hasil Eksperimen dengan Database

$2\theta$ Eksperimen	$2\theta$ 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  $2\theta$  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  $2\theta$  NaCl Hasil Eksperimen dan Database

$2\theta$ Eksperimen	$2\theta$ 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  $2\theta$  eksperimen dan sudut  $2\theta$  *database*. Pada sudut  $2\theta$  eksperimen didapat nilai sebesar  $31,78^\circ$  dan pada sudut  $2\theta$  *database* sebesar  $30,91^\circ$ . Kemudian puncak pada sudut  $2\theta$  eksperimen yang kedua nilai  $2\theta$  yang didapat adalah sebesar  $45,52^\circ$  dan pada  $2\theta$  *database* adalah  $45,08^\circ$ . Pada sudut tertinggi terakhir sudut  $2\theta$  eksperimen adalah  $66,32^\circ$  dan sudut  $2\theta$  *database* adalah  $66,98^\circ$ .

**Tabel 4.5** Perbandingan  $2\theta$  KCl Hasil Eksperimen dan Database

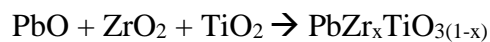
$2\theta$ Eksperimen	$2\theta$ JCPDS
28,34	29,26
40,51	41,34
50,21	51,17

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  $2\theta$  eksperimen mempunyai nilai  $28,34^\circ$  sedangkan  $2\theta$

*database* sebesar 29,26°. Kemudian pada puncak kedua, sudut  $2\theta$  eksperimen mempunyai nilai 40,51° dan sudut  $2\theta$  *database* sebesar 41,34°. Terakhir pada sudut  $2\theta$  eksperimen mempunyai nilai sebesar 50,21° dan pada sudut  $2\theta$  *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, ZrO<sub>2</sub>, dan TiO<sub>2</sub> dengan bantuan garam NaCl dan KCl. Sebelum dilakukan sintesis bahan dasar dilakukan perhitungan stoikiometri seperti pada persamaan berikut ini :



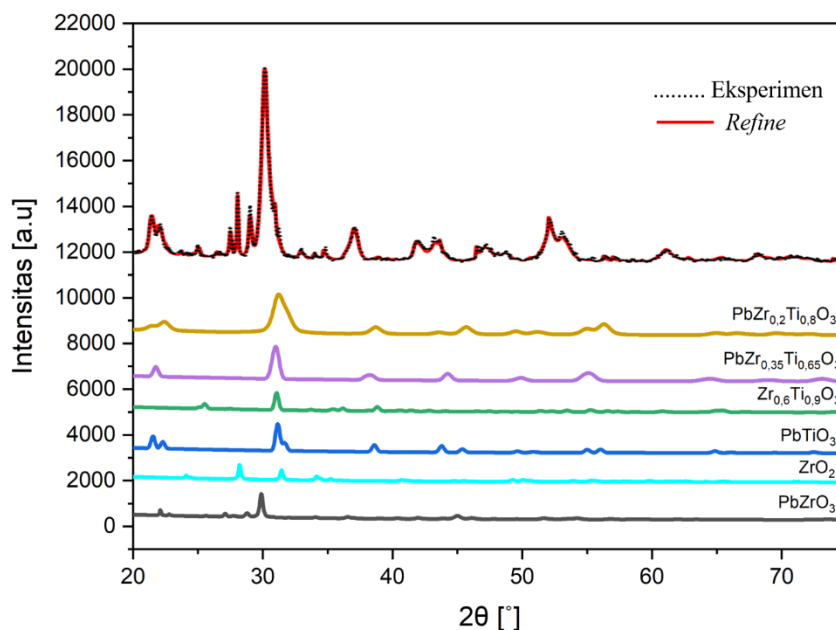
Proses awal dalam sintesis PZT ini adalah menyiapkan bahan dasar dan garam yang akan digunakan. Bahan dasar PbO, ZrO<sub>2</sub>, dan TiO<sub>2</sub> ditimbang sesuai dengan perhitungan yang telah dilakukan. Kemudian bahan dasar tersebut dicampur dan digerus selama 4 jam. Hal ini dilakukan agar bahan 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

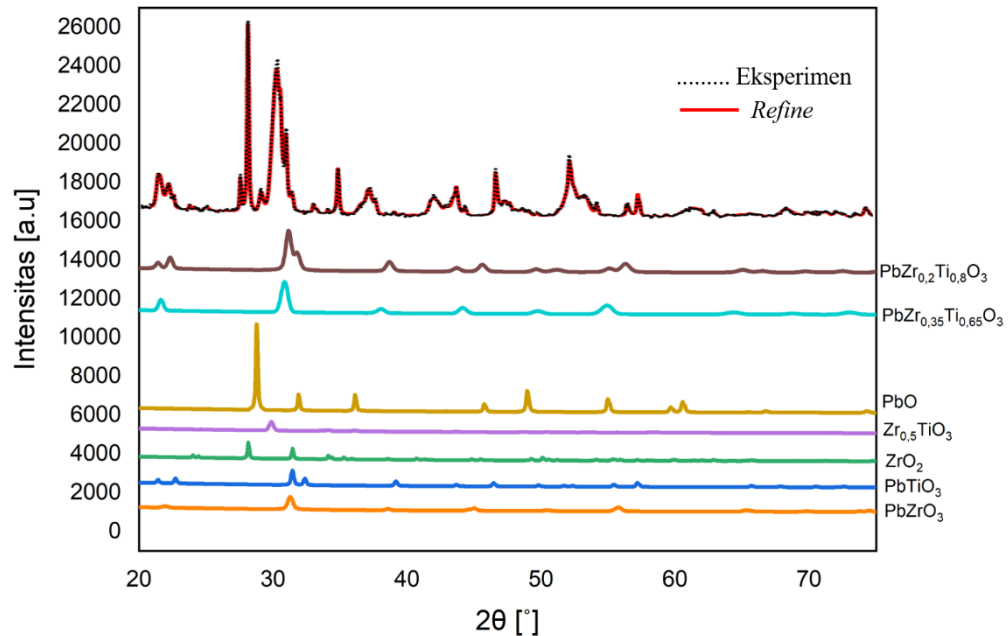


**Gambar 4.3** Grafik *XRD* Hasil Sintesis 1,1 Jam

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

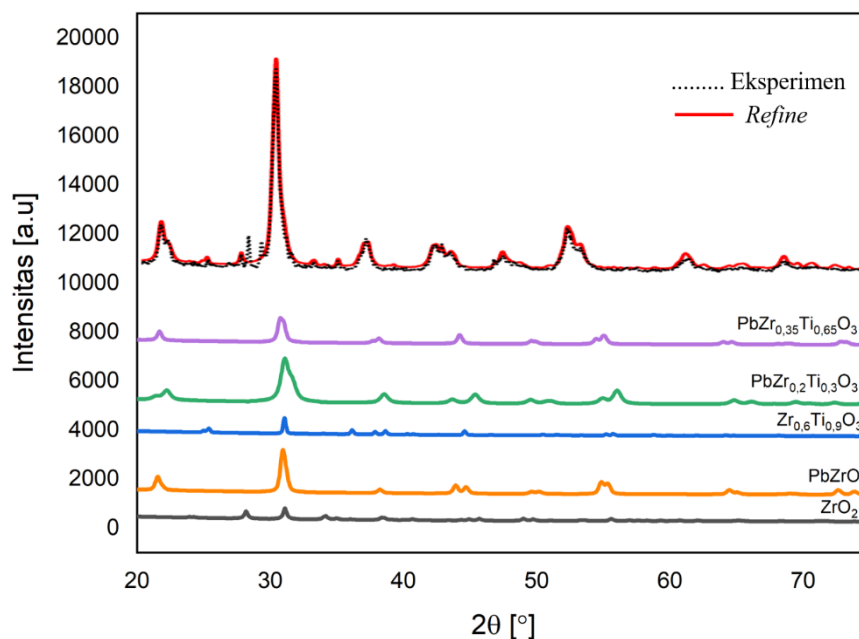


**Gambar 4.4** Grafik XRD Hasil Sintesis 3,1 Jam

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 ZrO<sub>2</sub>. Hal ini terlihat dari grafik dimana puncak PbO lebih tinggi dibandingkan dengan puncak dari produk akhir PbZr<sub>0.2</sub>Ti<sub>0.8</sub>O<sub>3</sub> dan PbZr<sub>0.35</sub>Ti<sub>0.65</sub>O<sub>3</sub>. Senyawa PbZr<sub>0.2</sub>Ti<sub>0.8</sub>O<sub>3</sub> mempunyai sistem kristal tetragonal dan senyawa PbZr<sub>0.35</sub>Ti<sub>0.65</sub>O<sub>3</sub> 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

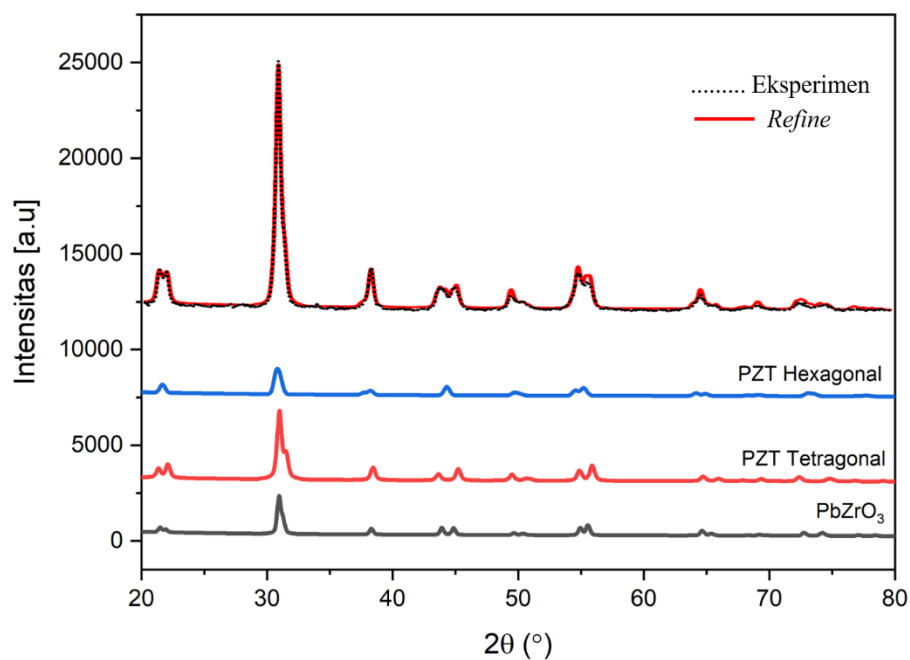


**Gambar 4.5** Grafik XRD Hasil Sintesis 4,5 Jam

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  $\text{PbZr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65}\text{O}_3$  dan  $\text{PbZr}_{0,3}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$  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  $\text{PbZrO}_3$  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 <sub>wp</sub> (%)	R <sub>exp</sub>	R <sub>p</sub>
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<sub>wp</sub> 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<sub>wp</sub> sebesar 7% dan nilai R<sub>wp</sub> terkecil dimiliki oleh sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam.

Kemudian sampel dengan waktu pemanasan 1,1 jam mempunyai nilai R<sub>exp</sub> 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<sub>exp</sub> sebesar 4,1. Untuk nilai R<sub>p</sub> sampel dengan waktu pemanasan 3,1 jam mempunyai nilai 7,9 kemudian sampel dengan waktu pemanasan 4,5 jam mempunyai nilai R<sub>p</sub> 7,8 selanjutnya sampel dengan waktu pemanasan 5 jam mempunyai nilai R<sub>p</sub> sebesar 5,5 dan sampel terakhir dengan waktu pemanasan 1,1 jam mempunyai nilai R<sub>p</sub> sebesar 4,1.