

Studi Pendahuluan Analisis Ukuran Partikel CuAl_2O_4 Berdasarkan Difraktogram Sinar-X

Preliminary Study of Particle Size Analysis CuAl_2O_4 based on X-ray Diffraction

Shielda Natalia Joris^{1)*}, Yuli Ainun Rosidah²⁾

¹ Jurusan Kimia, Universitas Pattimura

² Program Studi Teknik Kimia, Sekolah Tinggi Teknik Industri Turen

Received 27th July 2020 / Accepted 3rd August 2020

ABSTRAK

Penelitian pendahuluan analisis ukuran partikel CuAl_2O_4 dilakukan untuk mengetahui probabilitas menghasilkan nanopartikel ini dalam sistem air menggunakan teknik sol-gel. Tembaga nitrat, aluminium nitrat, dan asam sitrat digunakan sebagai bahan prekursor. Proses pembentukan senyawa ini diawali dengan kompleks prekursor dan melibatkan intermediet stabil yang homogen. Struktur nanopartikel CuAl_2O_4 terjadi ketika semua prekursor dikalsinasi pada 700 °C di tungku selama satu jam. Produk dikarakterisasi dengan menggunakan metode difraksi sinar-X. Penentuan ukuran partikel dihitung dengan metode Hukum Scherrer diperoleh hasil sebesar 9,56 nm.

Kata kunci: Nanopartikel, CuAl_2O_4 , sol-gel, Hukum Scherrer, sinar-X

ABSTRACT

Preliminary research on CuAl_2O_4 particle size analysis was conducted to determine the probability of synthesizing these nanoparticles in water system by using the sol-gel technique. Precursors materials which have been used i.e Copper nitrate, aluminium nitrate, and citric acid. This technique starts from the precursor complex, and involves the formation of homogeneous stable intermediates. The structure of CuAl_2O_4 nanoparticle occurred when all precursors were calcinated at 700 °C at the furnace for an hour. The product was characterized by using X-ray diffraction method. The particle size was measured by Scherrer Law's and it showed to be 9,56 nm.

Keywords: Nanoparticle, CuAl_2O_4 , sol-gel, Scherrer Law, X-ray

PENDAHULUAN

Spinel merupakan material semikonduktor yang penting dengan *band gap* yang sempit dan efisiensi yang tinggi terhadap penggunaan sinar matahari, serta memiliki beberapa struktur kristal. Pengembangan spinel fotokatalis yang stabil dengan efisiensi tinggi sangat penting sebagai penghantar dalam katalisis sinar tampak dan degradasi

*Korespondensi:
email: shieldajoris@gmail.com

pengotor organik. Beberapa spinel fotokatalis yang telah berhasil disintesis antara lain $ZnFe_2O_4$, $CuMn_2O_4$, $ZnMn_2O_4$, $BaCr_2O_4$, dan $CuAl_2O_4$.

$CuAl_2O_4$ merupakan spinel dengan sifat fotokatalitik yang sangat baik (Yanyan dkk., 2007). Sintesis $CuAl_2O_4$ dengan metode sol-gel pada berbagai temperatur kalsinasi menunjukkan aktivitas fotokatalitik terbaik pada temperatur 700°C. Pita celah spinel $CuAl_2O_4$ telah diukur pada kisaran 3,3-4,5 eV sementara pita celah TiO_2 3,2 eV (Castillo-Hernández dkk., 2018; Vijayalakshmi dkk., 2012). Oleh karena itu, $CuAl_2O_4$ merupakan material semikonduktor yang menarik untuk dipelajari sifat fotokatalitiknya terhadap reaksi pemecahan molekul air menjadi H_2 dan O_2 (*water-splitting*).

Beberapa metode yang digunakan untuk mensintesis material fotokatalis $CuAl_2O_4$ antara lain metode *diffusion-controlled growth*, kopresipitasi, *reverse microemulsion*, *chelates mixed thermolysis*, dan sol-gel (Menon dkk., 2016; Chandradass dkk., 2010; Edrisi dkk., 2013; Yanyan dkk., 2007). Metode sol-gel sering digunakan untuk mensintesis padatan nanokristal karena menghasilkan produk dengan kualitas tinggi, kemurnian tinggi, dan ukuran partikel yang kecil. Selain itu, kontrol reaksi dalam metode sol-gel lebih mudah diatur dibandingkan dengan metode-metode yang lain (Yanyan dkk., 2007).

Beberapa penelitian sebelumnya menunjukkan bahwa spinel ini dapat disintesis melalui metode sol-gel dengan menggunakan pelarut polihidroksi alkohol seperti etilen glikol dan dietilen glikol monoetil eter (Salavati-Niasari dkk., 2009). Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui probabilitas menghasilkan nanopartikel $CuAl_2O_4$ dalam sistem air menggunakan teknik sol-gel. Karakterisasi produk yang dihasilkan menggunakan difraksi sinar-X. Sedangkan ukuran partikel dari produk ditentukan dengan menggunakan metode Hukum Scherrer.

METODE

Penelitian yang dilakukan merupakan penelitian eksperimental meliputi penyiapan sol larutan prekursor, pembuatan gel larutan prekursor, pemanasan gel menggunakan oven, dan kalsinasi pada 700 °C. Karakterisasi ukuran partikel produk yang dihasilkan menggunakan difraktometer sinar-X.

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain garam tembaga nitrat ($Cu(NO_3)_2 \cdot 3H_2O$) salt p.a Merck, aluminium nitrat ($Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$) p.a Merck, asam sitrat p.a Merck, amoniak p.a Merck, akuades dan kertas indikator universal.

Peralatan yang digunakan antara lain satu set alat gelas pyrex, oven, tanur, cawan krus alumina, termometer, difraktometer sinar-X.

Prosedur Kerja

Larutan prekursor aluminium dan tembaga dilarutkan dalam 100 mL akuades dengan perbandingan mol 1 : 2. Setelah diperoleh larutan homogen, sebanyak 100 mL asam sitrat 1,5 M ditambahkan tetes demi tetes. Selanjutnya, pH larutan dibuat menjadi 2-3 dengan menambahkan amoniak pekat sambil tetap diaduk menggunakan pengaduk magnet. Pada tahap ini diperoleh prekursor sol berwarna biru. Larutan prekursor kemudian dipanaskan pada suhu 50-70 °C. Selanjutnya diperoleh gel yang lebih kental. Setelah gel terbentuk,

pemanasan dilanjutkan dengan oven pada suhu 170 °C selama 1,5 jam sampai kering dan membentuk *honeycomb porous gel*. *Honeycomb porous gel* ini kemudian dihaluskan dan dikalsinasi dalam tanur pada suhu 700 °C selama 1 jam. Produk yang dihasilkan kemudian dianalisis menggunakan difraksi sinar-X.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis CuAl₂O₄ dengan metode sol-gel telah berhasil dilakukan. Metode sol-gel pada dasarnya merupakan proses pembentukan senyawa yang menggunakan temperatur rendah dan melibatkan fasa sol, yaitu suatu sistem koloid padatan yang terdispersi dalam cairan, dan gel adalah sistem padatan yang porinya mengandung cairan (Ismunandar, 2006). Metode sol-gel ini juga merupakan salah satu metode sintesis material berukuran nano (Fernandez, 2011; Chauhan, 2011; Nadagouda dkk., 2013)

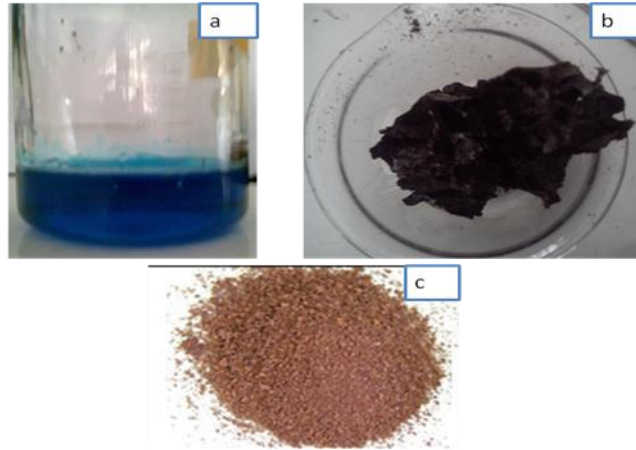
Dalam sintesis CuAl₂O₄, digunakan garam tembaga nitrat dan aluminium nitrat. Kedua garam ini berfungsi sebagai sumber Cu dan Al dalam padatan CuAl₂O₄. Garam tembaga dan aluminium larut dengan baik dalam akuades, serta mudah membentuk hidroksida dan asam nitrat. Pada pemanasan suhu tinggi, hidroksida logam akan berubah menjadi oksida logam. Sementara pada pemanasan 72 °C asam nitrat akan terdekomposisi menjadi air, nitrogen dioksida, dan oksigen.

Pemanasan tembaga hidroksida dapat membentuk tembaga oksida (CuO) dan air. Namun, tembaga oksida tidak larut dalam air, sehingga perlu ditambahkan amoniak pekat untuk membentuk amonium hidroksida dengan air untuk menstabilkan pembentukan CuO.

Asam sitrat berfungsi sebagai agen pengkelat yang mengkelat ion-ion logam dalam bentuk hidroksinya. Perbandingan antara mol asam sitrat dan kedua ion logam adalah 2 : 1, hal ini memungkinkan asam sitrat dapat mengkelat baik hidroksi aluminium maupun hidroksi tembaga untuk membentuk sol aluminium dan sol tembaga. Semakin banyak ion logam yang terjebak dalam kerangka kelat asam sitrat, maka produk yang diharapkan dapat terbentuk dengan lebih banyak.

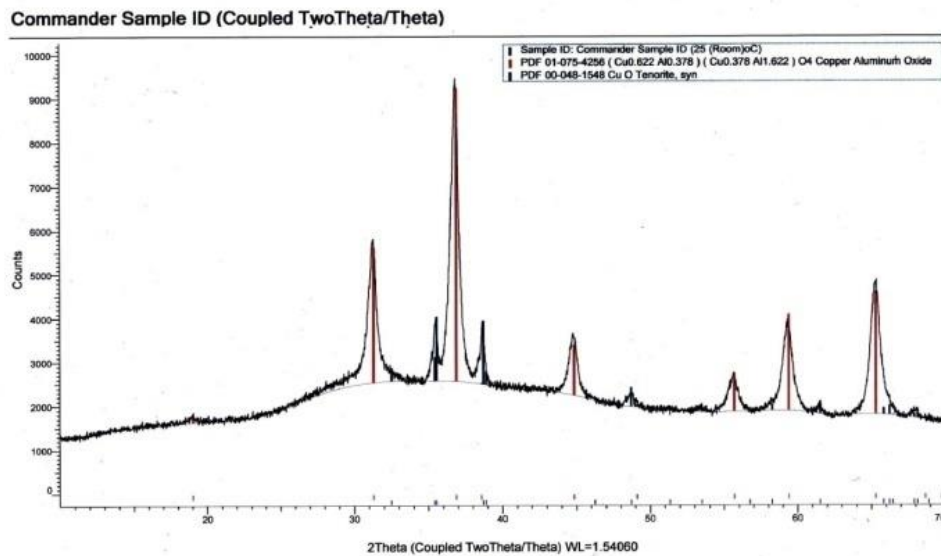
Setelah sol terbentuk, pemanasan lebih lanjut menghasilkan gel berwarna biru, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1 (a). *Honeycomb porous gel*, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1 (b) terbentuk ketika gel biru ini dipanaskan pada 170 °C. Asam sitrat memiliki suhu dekomposisi termal pada 175 °C, sehingga tahap pemanasan di suhu 170 °C, hanya akan menyebabkan sebagian kecil asam sitrat menguap. Adanya sebagian besar asam sitrat dalam *honeycomb porous gel* yang diperoleh pada tahap ini dapat diidentifikasi secara kualitatif melalui warna hitam pada padatan.

Pemanasan lebih lanjut melalui kalsinasi pada 700 °C akan membuat asam sitrat mengalami dekomposisi termal sempurna sebagai CO₂ dan H₂O yang menguap. Pada tahap ini diperoleh padatan coklat seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1 (c). Hal inilah yang menyebabkan selisih antara massa padatan sebelum dan sesudah kalsinasi sangat besar.



Gambar 1. (a) Gel oksida berwarna biru, (b) *honeycomb porous gel*, and (c) padatan coklat CuAl_2O_4

Difraksi sinar-X yang dilakukan menggunakan difraktometer sinar-X dengan sumber radiasi Cu-K α menghasilkan difraktogram yang terbentuk antara intensitas sinar dengan 2θ . Pada difraktogram yang terlihat pada Gambar 2, didapatkan enam puncak karakteristik dari CuAl_2O_4 dan beberapa puncak karakteristik CuO, seperti yang terdapat di Tabel 1.



Gambar 2. Difraktogram CuAl_2O_4

Tabel 1. Puncak Difraksi CuAl_2O_4 dan CuO

2θ (°) CuAl_2O_4	2θ (°) CuO
31,2615	35,6039
36,8943	35,6244
44,9032	38,7583
55,6672	48,8564
59,3232	
65,3247	

Hasil difraktogram juga menunjukkan beberapa puncak CuO yang berhimpit dengan *noise*. Hal ini menunjukkan bahwa sebelum membentuk CuAl₂O₄, material yang terbentuk adalah oksida logamnya. Hasil difraktogram ini dibandingkan dengan sintesis CuAl₂O₄ menggunakan temperatur kalsinasi 700°C selama 2 jam yang menunjukkan pembentukan CuAl₂O₄ secara sempurna (Yanyan dkk., 2007). Dengan demikian, dapat diprediksikan bahwa waktu kalsinasi memegang peranan penting dalam pembentukan material CuAl₂O₄.

Dari data hasil difraksi sinar-X menggunakan sumber radiasi CuK_α ($\lambda=1,54060 \text{ \AA}$) yang diperoleh, perhitungan ukuran kristal CuAl₂O₄ yang dihasilkan dapat dilakukan dengan menggunakan Hukum Scherrer berdasarkan enam puncak difraksi yang sesuai, sebagai berikut (Waseda and Shinoda, 2011).

$$t = \frac{0,9 \lambda}{B_{1/2} \cos \theta}$$

Keterangan :

- t = Ukuran kristal
- λ = Panjang gelombang radiasi yang digunakan
- $B_{1/2}$ = *Full Width at Half Maximum* (FWHM)
- θ = Posisi puncak difraksi

Dari perhitungan diperoleh ukuran partikel rata-rata yang disintesis adalah 9,56 nm. Ukuran ini lebih kecil dibandingkan dari penelitian sebelumnya oleh Salavati-Niasari dkk. (2009) yang melaporkan ukuran 28 nm dengan metode asam sitrat yang tidak dimodifikasi dan 17 nm dengan memodifikasi asam sitrat dalam pelarut dietilen glikol monoetil eter (DGME). Hasil ini juga lebih kecil dibandingkan penelitian yang telah dilakukan Yanyan dkk. (2007) dengan melakukan kalsinasi selama 2 jam pada suhu 700 °C dan memperoleh partikel dengan ukuran antara 10-30 nm.

KESIMPULAN

Nanopartikel CuAl₂O₄ dapat disintesis menggunakan metode sol-gel dalam sistem air. Hasil analisa difraktogram sinar-X menunjukkan bahwa kalsinasi pada temperatur 700 °C selama 1 jam menghasilkan produk CuAl₂O₄ dengan ukuran 9,56 nm. Ukuran partikel yang dihasilkan lebih kecil bila dibandingkan dengan hasil sintesis Yanyan dkk. (2007) dan Salvati-Niasari (2009), sehingga diharapkan lebih efektif untuk diaplikasikan.

DAFTAR PUSTAKA

- Castillo-Hernández G, Mayén-Hernández S, Castaño-Tostado E, DeMoure-Flores F, Campos-González E, Martínez-Alonso C, Santos-Cruz J. 2018. *CuAlO₂ and CuAl₂O₄ thin films obtained by stacking Cu and Al films using physical vapor deposition. Physics, 9,745-752.*

- Chandradass J and Kim K. 2010. Synthesis and characterization of CuAl_2O_4 nanoparticles via a reverse microemulsion method. *Journal of Ceramic Processing*, 11, 150-153.
- Chauhan B. 2011. *Hybrid Nanomaterials: Synthesis, Characterization, and Applications*. Canada : John Wiley & Sons, Inc.
- Edrisi M, Tajik S, Soleymani M. 2013. Synthesis of CuAl_2O_4 nanoparticles by mixed chelates thermolysis and homogeneous precipitation using solubility difference reactions; Taguchi optimization and photocatalytic application. *J. Mater. Sci : Mater Electron*, 24, 3914-3920.
- Fernandez B. 2011. *Sintesis Nanopartikel*. [Makalah]. Padang: Universitas Andalas.
- Ismunandar. 2006. *Padatan Oksida Logam : Struktur, Sintesis dan Sifat-sifatnya*. Bandung: Penerbit ITB.
- Menon S G, Kulkarni S D, Choudhari K S, Santosh C. 2016. Diffusion-controlled growth of CuAl_2O_4 nanoparticles: effect of sintering and photodegradation of methyl orange. *J. Of Exp. Nanoscience*, 11(15), 1227-1241.
- Nadagouda M N, Dionysiou D D, Lytle D A, Speth T F, Mukhopadhyay S M. 2013. Nanomaterials Synthesis, Applications, and Toxicity. *Journal of Nanotechnology*. 2013: 1-2.
- Salavati-Niasari M, Davar F, Farhadi M. 2009. Synthesis and characterization of spinel-type CuAl_2O_4 nanocrystalline by modified sol-gel method. *J. Sol-Gel Sci. Techn*, 51, 48-52.
- Vijayalakshmi R and Rajendran V. 2012. Synthesis and characterization of nano- TiO_2 via different methods. *Archives of Applied Science Research*, 4: 1183-1190.
- Waseda Y, Matsubara E, Shinoda K. 2011. *X-Ray Diffraction Crystallography: Introduction, Examples and Solved Problems*, New York: Springer.
- Yanyan J, Jinggang L, Sui X, Guiling N, Chengyu W, Xiumei G. 2007. CuAl_2O_4 powder synthesis by sol-gel method and its photodegradation property under visible light irradiation. *J. Sol-Gel Sci. Techn.*, 42, 41-45.