# KINEMATIKA KRISTALISASI PADA KACA $60TeO_2$-30ZnO-$10Na_2O$

Agus Cahyana.(1), Ahmad Marzuki(2) Cari (3)

(1,2,3)Jurusan Ilmu Fisika Pasca Sarjana
Universitas Sebelas Maret
Surakarta
(1)Email:aguscahyana_64@yahoo.com

## Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk menentukan karakteristik kinematika kaca TZN. Dalam penelitian ini dilakukan fabrikasi kaca tellurite dengan komposisi $60TeO_2$-30ZnO-$10Na_2O$. Penelitian ini diarahkan untuk mempelajari kinetika kristalisasi kaca, Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh variasi waktu dan laju pengkristalan untuk mendapatkan luas bagian kaca yang dikristalkan terhadap sifat thermal yang berkaitan dengan kinetika kristalisasi kaca. Dengan metode non-isotermal menggunakan *Differential scanning Calorimetry* (DSC) dan isothermal pada suhu 410 $^oC$, 420 $^oC$, 430 $^oC$, 440 $^oC$ dan 450 $^oC$ diperoleh fraksional dari luas kristalisasi bagian kaca dengan luas seluruhnya. Kesimpulan bahwa untuk membuat kristalisasi kaca tellurite dapat diperoleh dengan variasi suhu dan dengan waktu.

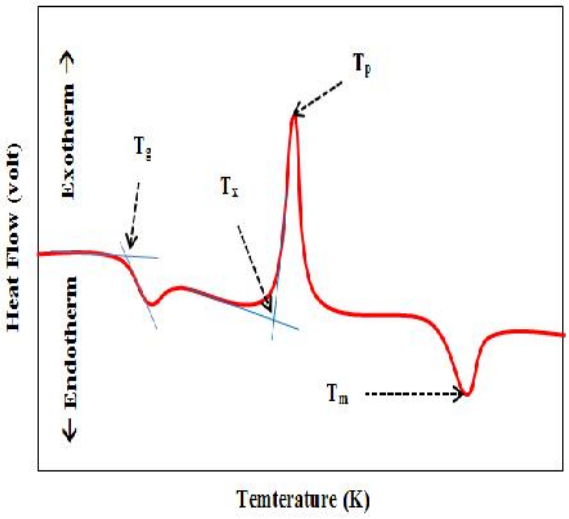
**Kata kunci :** fabrikasi, tellurite, kristal.

## I. Pendahuluan

Dalam beberapa tahun terakhir, kaca tellurite telah menjadi subyek penelitian yang sangat menarik bagi para peniliti. Hal ini karena kaca tellurite memiliki sifat ketahanan kimia yang baik, dan sifat termal yang baik yaitu memiliki stabilitas termal yang bagus serta titik lelehnya rendah. Kaca tellurite juga memiliki sifat optis yang bagus seperti indeks bias yang tinggi, transparansi yang bagus pada daerah mid-inframerah (0,35-6 µm), energi fonon yang rendah (700-800 $cm^{-1}$), serta memiliki kelarutan tinggi untuk ion tanah jarang (Raju *et.al*., 2013 and Jeong *et.al*., 2007).

Analisis thermal digunakan untuk menentukan beberapa sifat penting dari kaca diantaranya untuk menentukan indikator stabilitas terhadap kristalisasi, menentukan kecenderungan pembentukan kaca (*glass-forming tendency*) dan energi aktivasi dalam proses kristalisasi pada kaca. Analisis thermal dapat dilakukan dengan menggunakan alat *Differential Scanning Calorimetry* (DSC) atau *Differential Thermal Analyzer* (DTA)(Ozawa, 2000). Prinsip kerjanya adalah mendeteksi perubahan panas yang meningkat selama transformasi eksotermik dan penyerapan panas selama transformasi endotermik (Rosmawati, 2008).

kaca tellurate yang diuji dengan menggunakan *Differential scanning Calorimetry* (DSC) yang dibuat dengan metode *melt-quenching* akan menghasilkan grafik tampak seperti terlihat pada Grafik 1.




Grafik 1. Grafik Hasil Uji DSC pada Kaca tellurite

Dari hasil kurva DSC dapat ditentukan karakteristik kaca berupa suhu transisi kaca ($T_g$), suhu awal puncak kristalisasi ($T_x$), suhu puncak kristalisasi ($T_p$) dan suhu peleburan kaca ($T_m$). Dengan menggunakan $T_g$, $T_p$, $T_x$, dan $T_m$, dapat diperoleh indikator stabilitas terhadap kristalisasi ($S$) (Nowoseielski dan Babilas, 2010) yang dinyatakan pada Persamaan dibawah :

$$S = T_x - T_g \quad (1)$$

Persamaan (1) menunjukkan jika selisih $T_x$-$T_g$ meningkat maka stabilitas kaca ($S$) juga semakin meningkat. Meningkatnya nilai $S$ mengindikasikan semakin besarnya kemampuan pembentukan kaca atau semakin kecil kecenderungan terjadinya pembentukan kristalisasi pada kaca.

Analisis thermal juga digunakan untuk menentukan kinetika kristalisasi pada kaca. Kristalisasi merupakan perubahan struktur amorf menjadi struktur kristal (Thomas, 2003). Kinetika kristalisasi pada kaca dapat ditentukan dengan dua cara, yakni secara isothermal dan non-isothermal (Shelby, 2005). Pada proses isothermal, sampel kaca dipanaskan dengan cepat hingga mencapai $T_g$, kemudian selama proses kristalisasi, laju aliran panas ($aH$) dicatat sebagai fungsi waktu ($t$). Pada proses isothermal suhu ($T$) dijaga agar konstan. Sedangkan pada proses non-isothermal, sample kaca dipanaskan dengan *heating rate* ( ) tertentu, kemudian laju aliran panas ($aH$) dicatat sebagai fungsi suhu($T$) (Mallawany, 2002). Dalam penelitian ini, kinetika kristalisasi kaca tellurite dikaji secara non-isothermal. Studi kristalisasi kaca secara non-isothermal dilakukan dengan melakukan pemanasan pada sampel kaca menggunakan *heating rate* ( ) yang bervariasi. Jika semua parameter konstan, suhu transisi kaca ($T_g$) akan bertambah seiring dengan peningkatan *heating rate* ( ) (Shelby, 2005).

Kinetika kristalisasi pada kaca dapat dipelajari untuk mengetahui gelaja kristalisasi seperti nukleasi (pengintian) dan penumbuhan kristal dalam kaca dan pengaruh komposisi kaca terhadap gejala-gelaja tersebut. Menurut Jain *et.al*. (2009), model teoritis yang sangat cocok untuk menggambarkan kristalisasi pada kaca adalah dengan menggunakan Persamaan Johsnson-Mehl-Avrami (JMA) yang dinyatakan pada Persamaan (2).

$$\chi = 1 - \exp[-(K.t)^n] \quad (2)$$

Pada Persamaan (2), ¡merupakan fraksi volume, $n$ merupakan eksponen Avrami yang mengambarkan rincian pertumbuhan kristal dan $K$ merupakan konstanta laju reaksi yang mengambarkan tingkat kristalisasi.

Nilai eksponen Avrami ($n$) menunjukkan jenis nukleasi yang terjadi dan menunjukkan dimensi penumbuhan kristal (Sidel *et.al*, 2011). Nilai eksponen Avrami $n$=1 menunjukkan nukleasi terjadi di permukaan (*superficial*) dan $n$>1 menunjukkan nukleasi terjadi secara homogen (*volumetric*). Menurut Araujo dan Indalgo (2009), nilai eksponen Avrami $n\approx2$ menunjukkan mekanisme penumbuhan kristal terjadi secara satu-dimensi, $n\approx3$ menunjukkan mekanisme penumbuhan kristal terjadi secara dua-dimensi dan $n\approx4$ menunjukkan mekanisme penumbuhan kristal terjadi secara tiga-dimensi. Untuk $n$>4, mekanisme penumbuhan kristal terjadi secara tiga-dimensi dengan peningkatan laju nukleasi diikuti dengan penumbuhan kristal yang terkendali.

Analisis sifat thermal dilakukan secara isothermal dan non-isothermal. Pemanasan sampel dilakukan mulai dari suhu kamar sekitar 32$^o$C hingga suhu 600$^o$C. Dari grafik hasil uji DSC ditentukan suhu kristalisasi ($T_x$), suhu kaca transisi ($T_g$) dan dicari parameter kristalisasi kaca dengan menggunakan Persamaan Avrami

Analisis thermal juga digunakan untuk menentukan kinetika kristalisasi pada kaca. Kristalisasi merupakan perubahan struktur amorf menjadi struktur kristal

Secara stuktur mikro, proses pertama yang terjadi pada transformasi fasa adalah *nukleasi* yaitu pembentukan partikel sangat kecil atau nuklei dari fase baru. Nuklei ini akhirnya tumbuh membesar membentuk fasa baru. Pertumbuhan fase ini akan selesai jika pertumbuhan tersebut berjalan sampai tercapai fraksi kesetimbangan. Laju transformasi yang merupakan fungsi waktu (sering disebut kinetika transformasi) adalah hal yang penting dalam perlakuan panas bahan. Pada penelitian kinetik akan didapat kurva $S$ yang di plot sebagai fungsi fraksi

bahan yang bertransformasi terhadap waktu (logaritmik).

## II. Pembahasan

### 2.1 Metodologi Penelitian

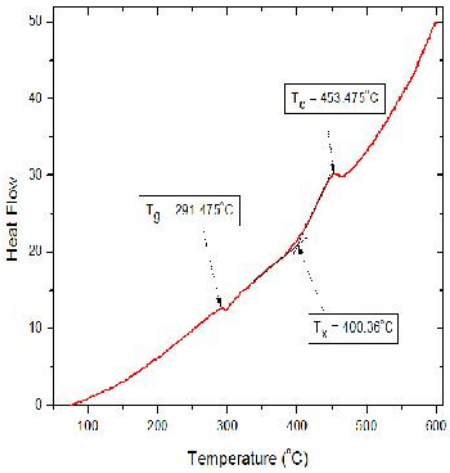
Alat yang digunakan dalam penelitian ini meliputi: spatula *stainless steel*, neraca digital (ketelitian ±0,01gram), lumpang dan alu dari bahan keramik, *crucible* platinum, *mold stainless steel* (ketebalan ±0,5cm), *furnace* Carbolite CWF 1100, sarung tangan anti panas dan tang penjepit, *furnace* Nabarthem, set alat *Differential scanning Calorimetry* (DSC)

Bahan kaca yang digunakan dalam penelitian ini yakni serbuk Tellurite Oxide ($TeO_2$) dengan kemurnian 99,99%, serbuk Zinc Oxide (ZnO) dengan kemurnian 99,9%, dan serbuk $Na_2CO_3$.

Pembuatan kaca tellurite dimulai dari penimbangan bahan $TeO_2$, ZnO, dan $Na_2CO_3$ berdasarkan presentase % mol dari komposisi setiap kaca, dan kemudian dicampurkan lalu diaduk dalam lumpang dan alu dari bahan keramik sampai 30 menit supaya tercampur homogen. Bahan tersebut kemudian diletakkan pada *crucible* platina untuk dilelehkan pada furnace bersuhu 900$^o$C selama 30 menit. Hal ini didasarkan pada banyak penelitian seperti yang dilakukan Ferreira *et.al.* (2003) yang meleburkan kaca tellurite pada suhu 900$^o$C selama 30 menit. Selanjutnya lelehan dicetak pada cetakan kaca yang sebelumnya telah dipanaskan pada suhu 250$^o$C di oven. Proses penuangan lelehan pada cetakan dilakukan secara cepat. Proses pembuatan kaca seperti ini dinamakan *melt-quenching*.

Sifat thermal kaca diuji dengan metode non isothermal menggunakan *Differential scanning Calorimetry* (DSC) yang ada di Lab. MIPA Terpadu UNS. Analisis DSC dilakukan untuk mengetahui suhu transisi kaca ($T_g$), suhu awal kristalisasi ($T_x$), suhu puncak kristalisasi ($T_p$), dan suhu melting kaca ($T_m$). Prinsip kerja DSC adalah mencatat perbedaan suhu ($\Delta T$) antara sampel kaca dan referensi yang dipanaskan secara bersamaan dalam satu *furnace*

Analisis sifat thermal dilakukan secara isothermal dan non-isothermal. Pemanasan sampel dilakukan mulai dari suhu kamar sekitar 32$^o$C hingga suhu 600$^o$C. Hasil uji DSC diperoleh grafik seperti grafik dibawah



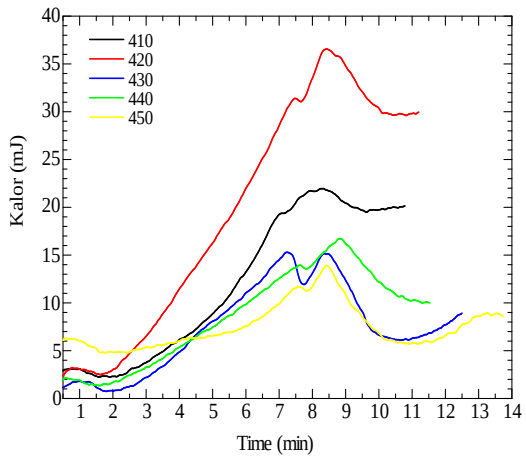

Grafik 2. grafik kalor(Q) dengan waktu (t) dengan non isothermal

Dari grafik(2) hasil uji DSC ditentukan suhu kristalisasi ($T_x$) =400,36$^o$C, suhu kaca transisi ($T_g$) 291,475$^o$C, suhu kristalisasi (Tc) =453,475 $^o$C dan dicari parameter kristalisasi kaca dengan menggunakan Persamaan Avrami. Kemudian sampel kaca juga dipanaskan pada suhu kristalisasi dengan variasi waktu pemanasan. Hal ini bertujuan untuk mengetahui rasio parsial daerah yang di kristalkan.

Analisis sifat thermal dilakukan secara isothermal pada suhu kisaran suhu kristalisasi pada 410 $^o$C, 420 $^o$C, 430 $^o$C, 440 $^o$C dan 450 $^o$C

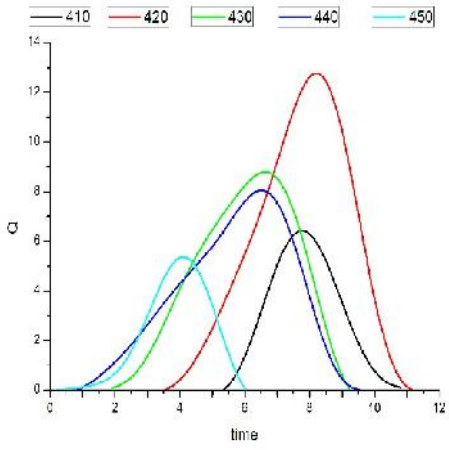
### 2.2. Hasil dan Pembahasan

Setelah dilakukan uji dengan *Differential scanning Calorimetry (DSC)* dengan metode isothermal pada 5 macam suhu yaitu suhu dibawah dan diatas dari suhu kristalisasi pada suhu 410 $^o$C, 420 $^o$C, 430 $^o$C, 440 $^o$C dan 450 $^o$C diperoleh data kalor (Q) dengan waktu (t) seperti grafik (3) :



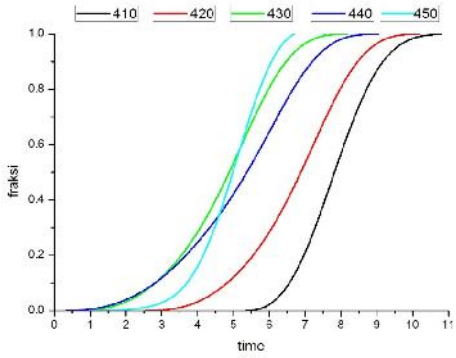

Grafik 3. grafik kalor(Q) dengan waktu (t)pada suhu 410 $^{o}$C, 420 $^{o}$C, 430 $^{o}$C, 440 $^{o}$C dan 450 $^{o}$C

Dengan analisis grafik kalor terhadap waktu diatas dengan software Origin Pro 9 dilakukan pengolahan data diawali dengan mengolah grafik kemudian dilakukan baseline diperoleh grafik gabungan ke lima macam suhu yaitu 410 $^{o}$C, 420 $^{o}$C, 430 $^{o}$C, 440 $^{o}$C dan 450 $^{o}$C seperti dibawah:



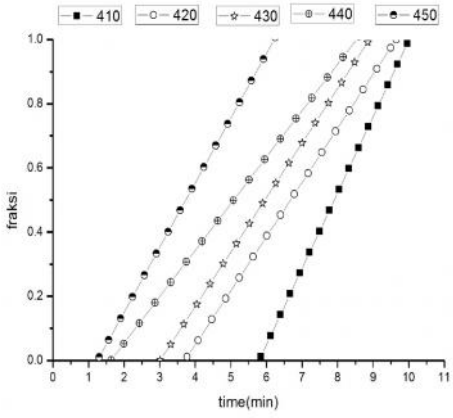

Grafik4. grafik baseline kalor(Q) dengan waktu (t)pada suhu 410 $^{o}$C, 420 $^{o}$C, 430 $^{o}$C, 440 $^{o}$C dan 450 $^{o}$C

Sedangkan untuk penghitungan fraksi yaitu perbandingan luas pada gafik yang sudah dibaseline pada saat tertentu dibagi luas seluruhnya. Penambahan selang waktu yang digunakan sebesar 0,0167 detik dengan software Origin Pro 9 diperoleh luasan pada selang waktu tersebut dan luas keseluruhan dari detik awal sampai terakhir, lalu diulang pada kelima macam suhu yang ada pada grafik beseline sehingga diperoleh grafik hubungan fraksi dengan waktu (t) , :




Grafik5. gabungan grafik hubungan fraksi dengan waktu

Dari grafik (5) diperoleh bahwa fraksi yang diperoleh angkanya dari 0 sampai 1, angka 0 menunjukan bahwa kaca tellurate masih berwujud kaca biasa dan angka 1 seluruh kaca tellurate sudah semua menjadi Kristal tellurate. Angka antara 0 sampai 1 merupakan prosentase dari bagian kaca tersebut menjadi Kristal, contohnya fraksinya 0,5 artinya kaca tersebut setengah bagian berujud kaca biasa dan setengah bagian kaca tersebut sudah menjadi Kristal. Grafik 3 diatas lalu difitting linier dengan Origin Pro 9 supaya diperoleh grafik linier maka diperoleh grafik 6 dibawah :




Grafik.6. Gabungan grafik fitting hubungan fraksi dengan waktu

Dari grafik 6 diatas maka dapat diperoleh suatu persamaan untuk menbuat Kristal tellurate dari berbagai variasi suhu dan berbagai varian waktu, semakin tinggi

suhu yang digunakan maka semakin cepat waktu yang diperlukan.

## III. Kesimpulan dan Saran

**Kesimpulan**

Berdasarkan grafik fraksional kaca tellurite menunjukkan nilai perbandingan fraksi dan waktu adalah fungsi linier banding lurus , sehingga dapat disimpulkan bahwa semakin tinggi suhu kristalisasi semakin cepat terbentuknya kristal.

**Saran**

Penelitian ini akan menjadi lebih mendalami dengan analisa yang lebih detail dari Kristal dari kaca tellurite TZN yaitu dengan uji SEM dan XRD yang akan dapat menghasilkan analisa kualitatif maupun kuantitatif dari Kristal tellurite TZN.

## IV. DAFTAR PUSTAKA

Jain, R.K., Deepika, Rathore, K.S., Jain, N., Saxena, N.S. 2009. Activation Energy of Crystallization and Enthalpy Released of $Se_{90}In_{10-x}Sb_x$ (x=0, 2, 4, 6, 8, 10) Chalcogenide Glasses. *Chalcogenide Letters*. Vol.6(3): 97-107.

Marzuki, A., and Jha, A. 2007. Effect of Pb-Ions on The Kinetics of Devitrification and Viscosities of $AlF_3$-based Glasses for Waveguide Fabrication. *Journal of Non-Crystalline Solids*. Elvesier. No.353: 1283-1286..

Nowosielski, R., and Babilas, R. 2010. Glass-Forming Ability Analysis of Selected Fe-based Bulk Amorphous Alloys. *Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*. Vol.24(1-2): 66-72.

Ozawa, T. 1999. Thermal Analysis-Review and Prospect. *Thermochimica Acta*. Elsevier. No.355: 35-42.

Raju, K.V., Raju, C.N., Sailaja, S., Reddy, B.S. 2013. Judde-Ofelt Analysis and Photoluminescence Properties of $RE^{3+}$ (RE=Er&Nd): Cadmium Lithium Boro Tellurite Glasses. *Solid State Sciences*. Elsevier. No. 15: 102-109.

Rosmawati, B.H. 2008. *Elastic, Optical And Thermal Properties Of $TeO_2$-ZnO And $TeO_2$-ZnO-$AlF_3$ Glass Systems*. Thesis Submitted for the Degree of PhD: University of Putra Malaysia. Malaysia.

Shelby, J.E. 2005. *Introduction to Glass Science and Technology* 2nd edition. The Royal Society Of Chemistry: USA. pp.202-221

Thomas, L.C. 2003. *An Introduction to the Techniques of Differential Scanning Calorimetry (DSC) and Modulated DSC*Ð. pp.9-26. **dalam** R.A. Diaz (edt.). *Thermal Analysis. Fundamentals and Applications to Material Characterization*. Proceedings of the International Seminar: Thermal Analysis and Rheology. Ferrol, Spain.

Notulensi Tanya Jawab

Penanya : Bangun

Pertanyaan : Apakah komposisi dari kaca tersebut, kaca semua atau kristal semua?
Jawaban : Kaca yang pertama masih semua kaca yang di DSC.
Yang kedua sudah dibuat semi kristal yang secara makro memang tidak terlihat.