

# SINTESIS PARTIKEL NANO BARIUM TITANAT MENGUNAKAN METODE PROSES PREKURSOR DENGAN PULP MERANG SEBAGAI TEMPLAT

Bambang Sunendar P<sup>a\*</sup>, Mery Agustina<sup>b</sup>, Arie Wibowo<sup>a</sup>, Evi Oktavia<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Kelompok Keahlian Teknik Fisika, FTI-ITB, Jl. Ganesha No 10, Bandung

<sup>b</sup> Program Studi Teknik Material, FTMD-ITB, Jl. Ganesha No 10, Bandung

<sup>c</sup> Balai Besar Pulp dan Kertas, Kementerian Perindustrian, Jl. Raya Dayeuhkolot No 132, Bandung

\* e-mail : purwa@tf.itb.ac.id

Diterima : 25 Agustus 2010, Revisi akhir : 04 November 2010

## ***SYNTHESIS OF NANOPARTICLES BARIUM TITANATE BY USING PRECURSOR PROCESS METHOD WITH RICE STRAW PULP AS TEMPLATE***

### ***ABSTRACT***

*Barium titanate (BaTiO<sub>3</sub>) with perovskite tetragonal crystal structure is known as ferroelectric materials. Recently, this material is widely used in electronic industry such as sensor, transducer, infrared detector and Multi Layer Ceramic Capacitors (MLCCs) because barium titanate is more environmental friendly, the  $T_{curie}$  of barium titanate is lower than the other dielectric materials and it has a high dielectric constant. Nanoparticle size of barium titanate is needed to improve the its performance. Conventional method of material synthesizing usually produces impurities from ball milling process and the particle size of material is not in nano size. This experiment, we synthesize barium titanate using precursor process method with pulp of rice straw (*Oryza sativa*) as a template. Variation in calcination temperature (700°C, 900°C, 1100°C) and precursor concentration (0.1 M and 0.07 M) was conducted to get information about the influence of calcination temperature and precursor concentration to the cristallinity and particle size of barium titanate. XRD result showed that barium titanate was already formed in 700°C calcination temperature and has its optimum temperature on 900°C. As the concequence of rising of calcination temperature, cristallinity of sample was increased. SEM images showed that particle size of sample was already in nano size. Meanwhile, as the result of decreasing of precursor concentration, the particle size of sample was decreased.*

*Key words : barium titanate, nano particle, pulp *Oryza sativa*, precursor process method*

### **INTISARI**

Barium titanat (BaTiO<sub>3</sub>) dengan struktur *kristal perovskite* tetragonal telah dikenal bersifat material ferroelektrik. Material ini telah banyak digunakan dalam aplikasi di bidang elektronik seperti sensor, *transducers*, *infrared detector* dan *multi layer ceramic capacitor* (MLCCs). Hal ini dikarenakan barium titanat lebih ramah lingkungan, memiliki  $T_{curie}$  yang lebih rendah daripada material dielektrik lain, dan memiliki konstanta dielektrik yang tinggi. Partikel barium titanat yang berukuran nano diperlukan untuk meningkatkan kinerjanya. Metode konvensional dalam memproses material seringkali menimbulkan pengotor yang berasal dari proses *ball milling* serta ukuran partikel yang didapatkan belum mencapai nano. Dalam penelitian ini, partikel titanat berukuran nano partikel disintesis dengan menggunakan metode proses prekursor dengan pulp merang (*Oryza sativa*) sebagai *template*. Variasi suhu kalsinasi (700°C, 900°C, 1100°C) dan konsentrasi prekursor (0,1 M dan 0,07 M) dilakukan untuk mengetahui pengaruh suhu kalsinasi dan konsentrasi prekursor terhadap kristalinitas dan ukuran partikel barium titanat. Hasil XRD menunjukkan bahwa pada suhu kalsinasi 700°C barium titanat telah terbentuk dan temperatur optimum pada 900°C. Seiring dengan peningkatan suhu kalsinasi, kristalinitas barium titanat juga meningkat. Hasil SEM menunjukkan serbuk barium titanat hasil sintesis telah berukuran nano. Dengan menurunkan konsentrasi prekursor menjadi 0,07 M, didapatkan serbuk barium titanat yang lebih kecil bila dibandingkan dengan serbuk yang disintesis menggunakan konsentrasi prekursor 0,1 M.

Kata kunci : barium titanat, nano partikel, pulp *Oryza sativa*, metode proses prekursor

## PENDAHULUAN

Seiring dengan perkembangan zaman, kebutuhan akan peralatan elektronik yang semakin kecil dengan performa yang semakin meningkat menjadi semakin besar. Salah satu komponen elektronik yang memegang peranan penting dalam perkembangan di industri elektronik adalah *multi layer ceramic capacitor* (MLCCs). Hingga saat ini material yang banyak dipakai untuk aplikasi MLCCs adalah *lead zirconate titanate* (PZT) (Brinker, 1990). Akan tetapi keberadaan timbal didalam PZT mengakibatkan material ini kurang ramah terhadap lingkungan. Selain itu, PZT memiliki suhu *curie* yang cukup tinggi yaitu sekitar 230°C (Yoon, 2002). Oleh karena itu, upaya untuk mencari material alternatif yang ramah lingkungan dan memiliki suhu *curie* yang lebih rendah menjadi sesuatu yang mendesak.

Salah satu material yang memiliki potensi yang sangat tinggi untuk aplikasi MLCCs adalah BaTiO<sub>3</sub>. Selain itu, BaTiO<sub>3</sub> banyak digunakan dalam aplikasi di bidang elektronik lainnya seperti sensor, *transducers* dan detektor infra merah. Hal ini dikarenakan BaTiO<sub>3</sub> memiliki konstanta dielektrik yang tinggi, suhu *curie* yang lebih rendah, yaitu 130°C, dan lebih ramah lingkungan karena tidak mengandung logam berat (Purwasasmita, 2000; Yoon dan Lee, 2002; Gomi dkk, 2004). Untuk meningkatkan performa MLCCs yang dihasilkan, diperlukan usaha untuk memperkecil ukuran diameter partikel sampai dibawah 100 nm, memperkecil distribusi ukuran partikel dan meningkatkan kemurnian masing-masing material penyusun (Gomi dkk, 2004; Srikanthan et. al, 2008).

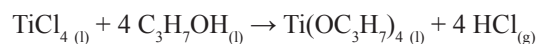
Hingga saat ini, pada umumnya BaTiO<sub>3</sub> disintesis melalui metoda *solid state reaction*. Akan tetapi, metoda ini memiliki beberapa kelemahan yaitu suhu sintering yang tinggi (1400-1450°C), masih adanya pengotor yang berasal dari proses *ball milling* serta ukuran partikelnya masih belum mencapai nano (Purwasasmita, 2000; Gomi dkk, 2004). Oleh karena itu, untuk mendapatkan partikel BaTiO<sub>3</sub> yang berukuran nano dengan kemurnian yang tinggi, maka dalam penelitian ini BaTiO<sub>3</sub> nano partikel disintesis dengan menggunakan metode proses prekursor dengan pulp merang (*Oryza sativa*) sebagai *template*. Diharapkan penelitian ini dapat memberikan alternatif metoda yang efektif untuk menghasilkan BaTiO<sub>3</sub> yang berkualitas. Pulp *Oryza sativa* dapat digunakan

sebagai ligan dalam preparasi nanopartikel karena mengandung selulosa dan hemiselulosa. Baik selulosa maupun hemiselulosa dapat bertindak sebagai polialkohol dan bereaksi membentuk turunan alkohol. Penggunaan pulp selama preparasi nanopartikel dapat secara signifikan mengurangi kecenderungan nanopartikel untuk beraglomerasi. Permukaan partikel yang disalut oleh selulosa dapat terhambat pembentukan aglomerasi ini disebabkan oleh halangan sterik polimer selulosa dan hemiselulosa untuk menghasilkan kristalit berukuran kecil (Shulklau dkk, 2002)

## BAHAN DAN METODA

### Sintesis TTIP (*Titanium Tetraisopropoxide*)

Dalam sintesis BaTiO<sub>3</sub>, kami menggunakan TTIP sebagai sumber titania karena proses sintesisnya lebih dapat dikontrol dengan menggunakan metoda sol gel. Untuk mensintesis TTIP 3,254 M, sebanyak 30 mL TiCl<sub>4</sub> dicampurkan dengan 84 mL C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>OH secara perlahan-lahan sesuai dengan persamaan reaksi sebagai berikut :



### Sintesis BaTiO<sub>3</sub>

Untuk mendapatkan BaTiO<sub>3</sub> nanopartikel, kami menggunakan metoda sol gel dengan bantuan pulp merang (yang berasal dari Balai Besar Pulp dan Kertas) sebagai templatnya. Pertama-tama dibuat larutan Ba(OH)<sub>2</sub> dengan cara melarutkan Ba(OH)<sub>2</sub> padatan kedalam aquades yang kemudian dilanjutkan dengan penambahan NaOH dengan perbandingan mol Ba(OH)<sub>2</sub>:NaOH sebesar 1:4. Kemudian larutan Ba(OH)<sub>2</sub>, pulp merang dan larutan TTIP dicampurkan dan diaduk merata dengan menggunakan magnetik stirrer selama satu jam dengan suhu proses mencapai 80°C. Setelah itu dilakukan aging campuran selama 20 jam pada suhu kamar. Endapan yang dihasilkan disaring dan dicuci dengan aquades sebanyak tiga kali untuk menghilangkan NaOH dari sampel. Endapan tersebut kemudian dikeringkan di dalam oven pada suhu 100°C selama 16 jam. Selanjutnya sampel dipanaskan pada suhu 550°C untuk menghilangkan pulp dan pengotor organik dari sampel. Setelah itu sampel dibagi 3 bagian untuk melihat pengaruh suhu kalsinasi terhadap sifat sampel yang dihasilkan (700°C,

900°C, 1100°C). Selain itu, untuk mengetahui pengaruh konsentrasi prekursor terhadap sifat sampel yang dihasilkan, maka dilakukan variasi dengan cara mengurangi konsentrasi prekursor dari 0,1 M menjadi 0,07 M. Ikhtisar variasi kondisi percobaan dari sampel yang digunakan dapat dilihat pada tabel 1.

Tabel 1. Ikhtisar Variasi Kondisi Percobaan dari Sampel yang digunakan

No. Sampel	Konsentrasi Prekursor	T <sub>kalsinasi</sub> (°C)
1	0.1 M	700
2	0.1 M	900
3	0.1 M	1100
4	0.07 M	700
5	0.07 M	900
6	0.07 M	1100

## Karakterisasi

Untuk mengetahui struktur kristal dari sampel yang dihasilkan, digunakan metoda *X-Ray Diffraction* (XRD) (*Philips Analytical X-Ray B.V.*, dengan  $\text{CuK}\alpha$ ,  $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$ ). Sedangkan morfologi dari sampel yang dihasilkan dikarakterisasi dengan menggunakan metoda *Scanning Electron Microscopy* (SEM) (JEOL JSM-6360LA).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Pengaruh Suhu Kalsinasi

Gambar 1 memperlihatkan difraktogram fasa-fasa serbuk  $\text{BaTiO}_3$  untuk konsentrasi prekursor 0,1 M setelah dikalsinasi pada suhu 700°C, 900°C dan 1100°C. Berdasarkan literatur (Maryani, 2008), dapat diketahui bahwa  $\text{BaTiO}_3$  telah terbentuk pada sampel yang dikalsinasi pada suhu 700°C. Dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi yang diberikan, maka kristalinitas  $\text{BaTiO}_3$  yang dihasilkan akan semakin meningkat. Hal ini ditunjukkan dengan semakin tinggi dan tajamnya puncak-puncak difraksi karakteristik  $\text{BaTiO}_3$  seiring dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi.

Dari difraktogram diatas, dapat terlihat bahwa pada sampel 1 (700°C) masih mengandung

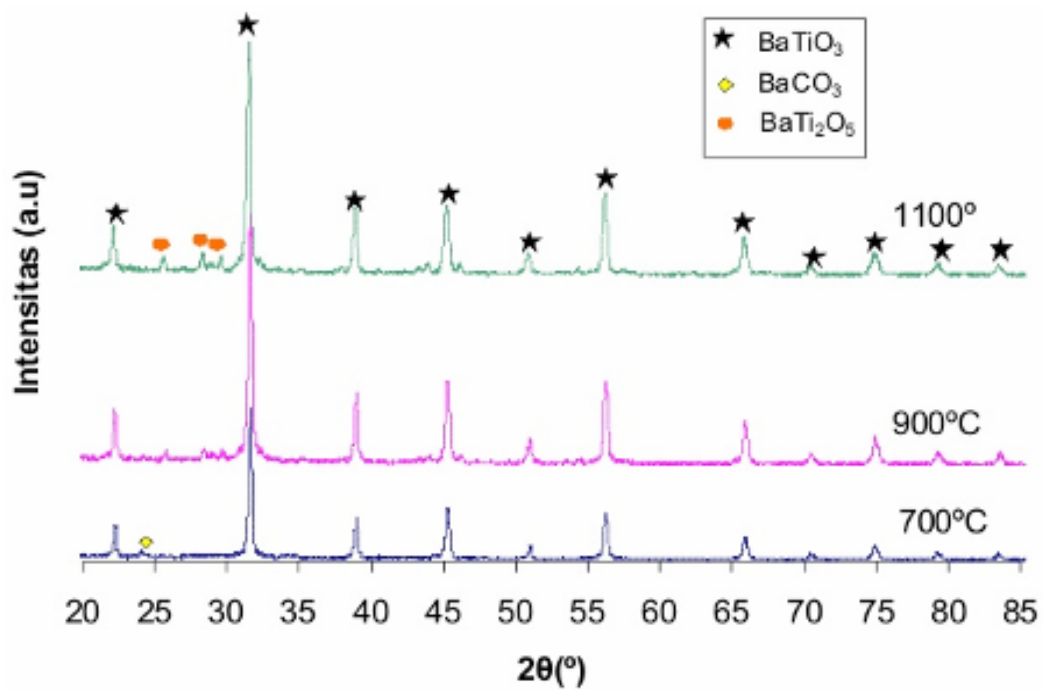
pengotor  $\text{BaCO}_3$ . Sedangkan pada sampel 2 (900°C) dan sampel 3 (1100°C), pengotor  $\text{BaCO}_3$  sudah tidak ditemukan. Hal ini karena titik leleh  $\text{BaCO}_3$  (811°C) yang lebih rendah daripada suhu dikalsinasi sampel 2 dan 3 (900°C dan 1100°C). Sedangkan adanya pengotor barium metadititanat ( $\text{BaTi}_2\text{O}_5$ ) (#PDF 340133) yang muncul pada sampel 2 (900°C) dan semakin meningkat pada sampel 3 (1100°C) disebabkan karena interaksi kimia antara ion  $\text{Ba}^{2+}$  dengan krus gelas yang semakin meningkat seiring dengan meningkatnya suhu kalsinasi[1]. Akibatnya keberadaan pengotor  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  didalam sampel semakin meningkat dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi. Keberadaan pengotor seperti barium metadititanat akan memberikan pengaruh kepada penurunan konstanta dielektriknya.

Fenomena serupa juga muncul pada sampel yang menggunakan konsentrasi prekursor yang lebih rendah yaitu 0,07 M (Gambar 2) dimana suhu kalsinasi optimum yang didapat adalah 900°C. Pada suhu ini, dihasilkan kristalinitas  $\text{BaTiO}_3$  yang tinggi dengan jumlah pengotor yang paling sedikit.

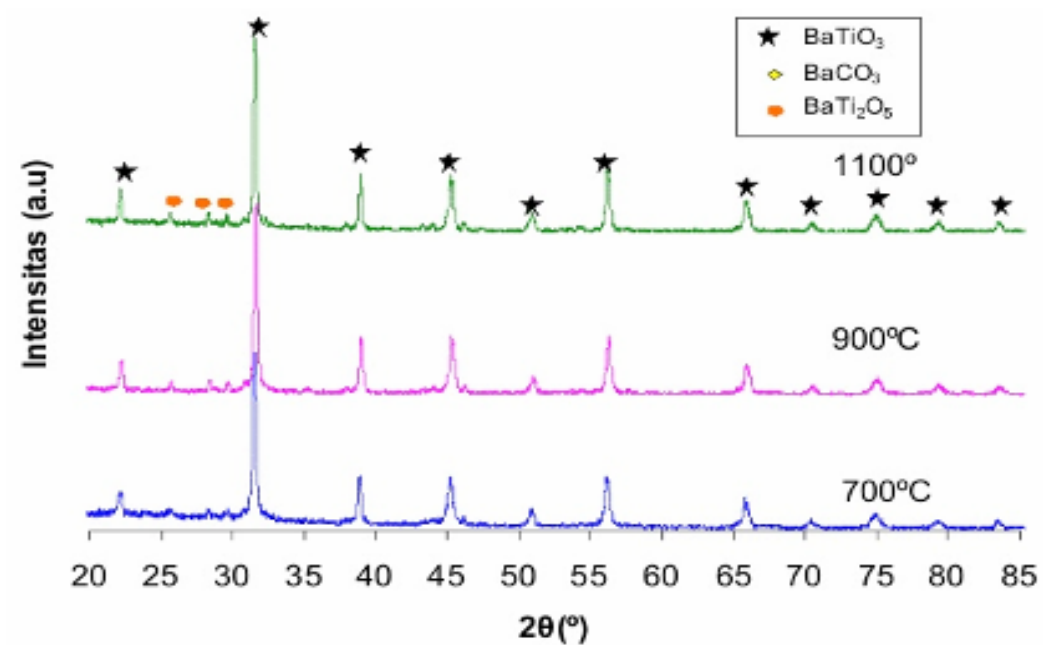
Untuk mengetahui pengaruh suhu kalsinasi terhadap morfologi sampel, dilakukan karakterisasi dengan menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM). Gambar 3(a), (b) dan (c) adalah gambar SEM yang dihasilkan untuk sampel  $\text{BaTiO}_3$  dengan konsentrasi prekursor 0,1 M yang dikalsinasi pada suhu 700°C, 900°C dan 1100°C.

Berdasarkan gambar SEM tersebut diketahui bahwa diameter partikel serbuk  $\text{BaTiO}_3$  yang dikalsinasi pada suhu 700°C berkisar antara 55-130 nm, yang menunjukkan bahwa  $\text{BaTiO}_3$  dengan ukuran nano partikel telah berhasil disintesis. Seiring dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi, diperoleh bahwa ukuran partikel  $\text{BaTiO}_3$  yang dihasilkan juga semakin meningkat. Hal ini dikarenakan fenomena penolakan Oswald, yang mengakibatkan terjadinya aglomerasi, semakin meningkat dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi (Callister, 2002).

Fenomena meningkatnya ukuran partikel seiring dengan meningkatnya suhu kalsinasi juga dapat diamati pada sampel yang menggunakan konsentrasi prekursor 0,07 M (gambar 4a, b dan c).

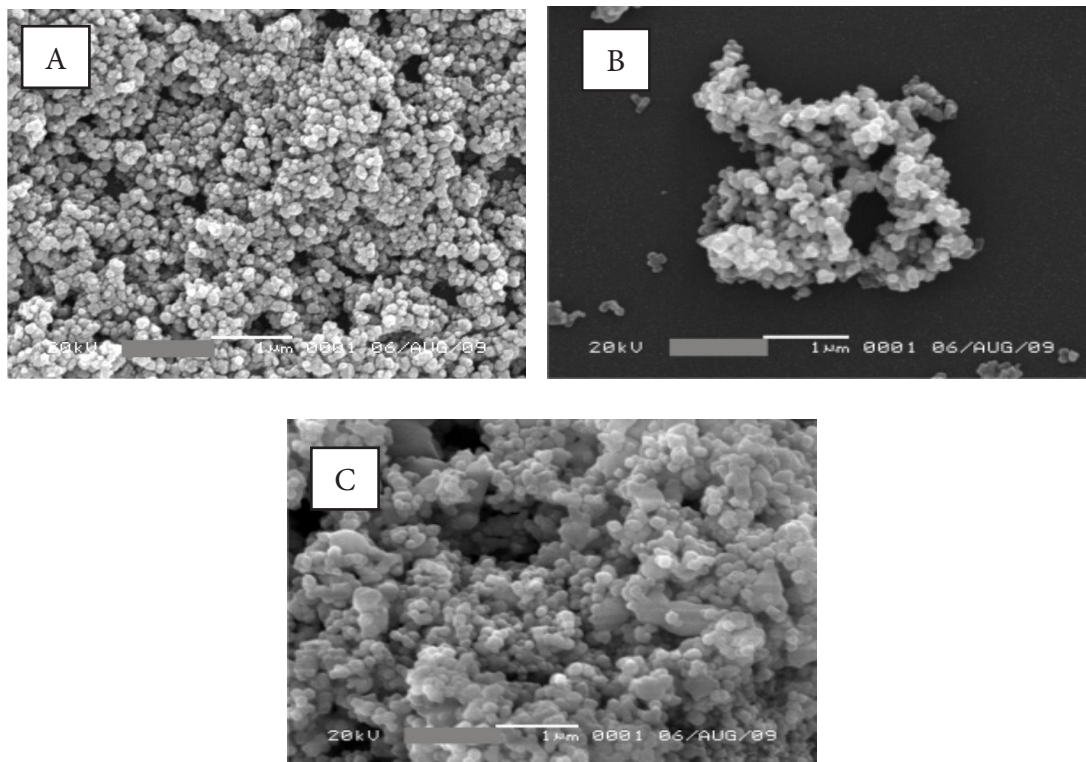


Gambar 1. Difraktogram Serbuk BaTiO<sub>3</sub>, Konsentrasi Prekursor 0,1M setelah Dikalsinasi pada Temperatur 700°C, 900°C dan 1100°C

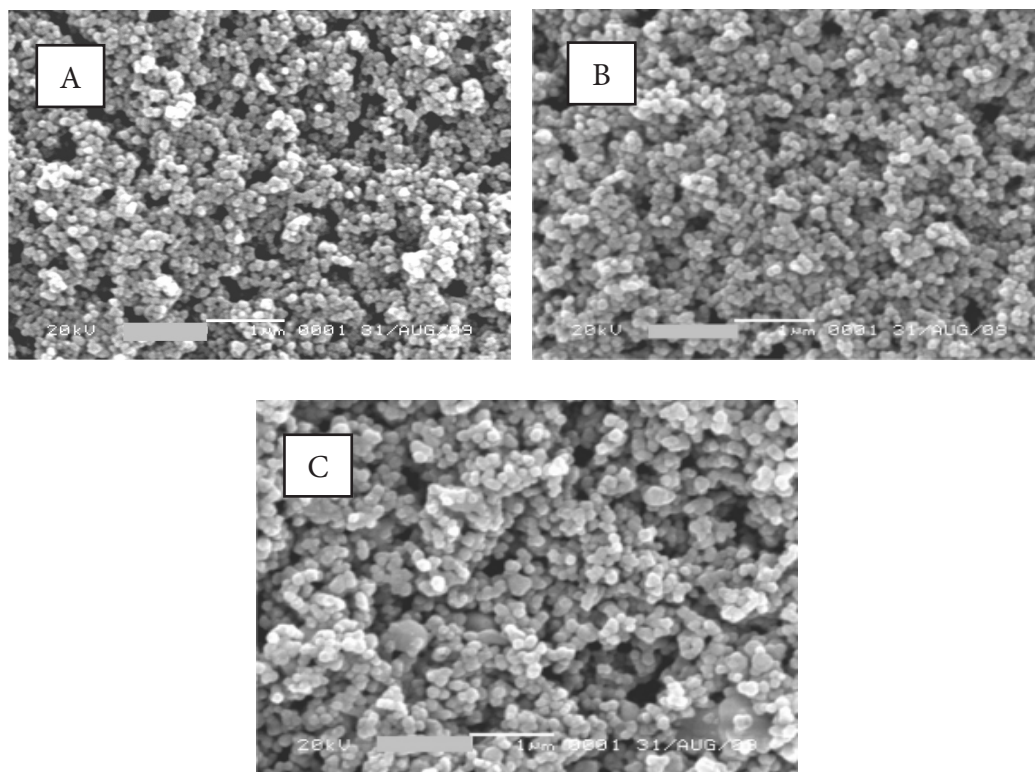


Gambar 2. Hasil XRD Serbuk BaTiO<sub>3</sub>, Konsentrasi Prekursor 0,07 M yang Dikalsinasi pada Temperatur 700°C, 900°C dan 1100°C





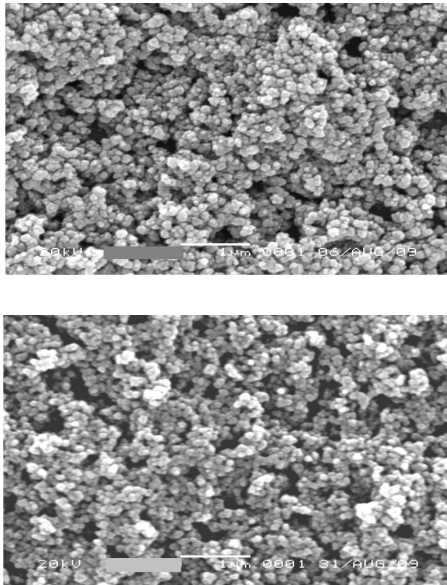
Gambar 3. Mikrostruktur Serbuk BaTiO<sub>3</sub> dengan Konsentrasi Prekursor 0,1 M untuk Temperatur Kalsinasi (a)700°C, (b) 900°C dan (c) 1100°C.



Gambar 4. Morfologi Serbuk BaTiO<sub>3</sub>, pada Konsentrasi Prekursor 0,07 M untuk Temperatur Kalsinasi (a) 700°C, (b) 900°C dan (c) 1100°C

## Pengaruh Konsentrasi Prekursor

Untuk mengetahui pengaruh konsentrasi prekursor terhadap ukuran partikel serbuk  $\text{BaTiO}_3$ , maka dilakukan perbandingan gambar SEM antara sampel 1 (yang berasal dari konsentrasi 0,1 M dan suhu kalsinasi  $700^\circ\text{C}$ ) dengan sampel 4 (yang berasal dari konsentrasi 0,07 M dan suhu kalsinasi  $700^\circ\text{C}$ ). Hasilnya dapat terlihat pada Gambar 5 (a) dan (b) berikut ini.



Gambar 5. Morfologi Serbuk  $\text{BaTiO}_3$ , dengan Temperatur Kalsinasi  $700^\circ\text{C}$  untuk Konsentrasi Prekursor (a) 0,1 M dan (b) 0,07 M.

Dari gambar SEM diatas, dapat dilihat bahwa perbedaan ukuran partikel antara sampel 1 dan sampel 4 tidak terlalu signifikan. Meskipun begitu, melalui perbandingan dengan skala pada gambar SEM, dapat diketahui bahwa sampel yang berasal dari konsentrasi 0,1 M memiliki ukuran yang lebih kecil (47-115 nm) daripada ukuran sampel yang berasal dari konsentrasi 0,07 M (55-130 nm). Penurunan ukuran partikel yang seiring dengan menurunnya konsentrasi prekursor dikarenakan proses pertumbuhan partikel akan semakin berkurang dengan semakin berkurangnya konsentrasi prekursor. Dengan menurunkan konsentrasi prekursor, maka dapat mencegah terjadinya pertumbuhan partikel yang berlebihan dan semakin lebarnya distribusi ukuran partikel (Brinker, 1990). Dengan ukuran partikel yang lebih kecil maka suhu sintering akan dapat diturunkan dan konstanta dielektrik material akan semakin meningkat yang diakibatkan dari terbentuknya single domain.

## KESIMPULAN

Sintesis serbuk  $\text{BaTiO}_3$  dengan ukuran sekitar 47 - 115 nm telah berhasil dilakukan dengan menggunakan metoda prekursor proses dengan pulp merang (*Oryza sativa*) sebagai templatnya. Seiring dengan semakin meningkatnya suhu kalsinasi, maka kristalinitasnya akan semakin meningkat. Seiring dengan bertambahnya pengotor barium metatitanat, sehingga diperoleh suhu optimum dalam sintesis  $\text{BaTiO}_3$  dalam percobaan ini yaitu  $900^\circ\text{C}$ . Ukuran partikel akan semakin semakin menurun seiring dengan semakin berkurangnya konsentrasi prekursor yang digunakan.

## DAFTAR PUSTAKA

- Brinker, C. J., Scherer, G.W., 1990, "Sol Gel Science, The Physics and Chemistry of Sol Gel Processing", Academic Press
- Callister, William, 2002 "Material Science and Engineering: An Introduction", Edisi ke-6, John Wiley & Sons, Inc
- Gomi, K., Tanaka, K., Kamiya, H., 2004 "Effect of Mixing Condition on Sol Gel Synthesis of Barium Titanate Ultrafine Particles", KONA no 22
- Maryani, Eneng, 2008 "Preparasi dan Karakterisasi Barium Titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) Platelet Terorientasi Melalui Metoda Sol Gel dan Dekomposisi BaTi-Sitrat", Tesis, Program Studi Teknik Fisika ITB
- Purwasasmita, Bambang Sunendar, 2000 "Chemical Interaction of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  and  $\text{BaTiO}_3$  Ceramics with Glasses", Disertasi Doktorat, Keio University
- Srikantan, S, et al., 2008 "Structural and Electrical Characteristic of Crystalline Barium Titanate Synthesized by Low Temperature Aqueous Method", Journal of Material Processing Technology, 195 171-177
- Shulka, S, Seal, S, Vij,R, dan Bandyopadhyay, S, 2002, "Effect of HPC and Water Concentration on the Evolution of Size Aggregation, and Crystallization of Sol-Gel Nano Zirconia", J. Nanopart Res, Vol. [4], 553-559
- Yoon, D.H & Lee, B.I, 2002 "Properties and Powder Characteristic for Ceramic Capacitors" Journal of Ceramics Processing Research, Vol 3, No 2, 41-47