



Sintesis Nanotitania dengan Cara Hidrotermal sebagai Fungsi Suhu

Sumiyati*, Posman Manurung, dan Suprihatin

Jurusan Fisika, Universitas Lampung, Bandar Lampung, Indonesia, 35141

Article Information

Article history:

Received Oktober 26th, 2021

Received in revised form

November 16th, 2021

Accepted November 18th, 2021

Keywords: Hydrothermal, nanotitania, TiOSO₄

Abstract

Research has been carried out on the synthesis of nanotitania by hydrothermal as a function of temperature. The purpose of this study was to determine the effect of temperature on the phase formation, structure and particle size of TiO₂ using the hydrothermal method with TiOSO₄ as the main ingredient. In this study, using temperature variations of 150, 200, 250 and 300°C and samples were characterized using X-Ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy (SEM). The phases formed are the anatase and rutile phases which have a tetragonal structure and the hilly phase with an orthorhombic structure. The rutile phase appeared predominantly in each sample and the sulfuric phase only appeared at 250°C. The anatase phase obtains a particle size of 10-18 nm, where the higher the temperature, the bigger the particle size. Furthermore, the rutile phase obtained a particle size of 14-25 nm, where the higher the temperature, the smaller the particle size.

Informasi Artikel

Proses artikel:

Diterima 26 Oktober 2021

Diterima dan direvisi dari

16 November 2021

Diterima 18 November 2021

Kata kunci: Hidrotermal, nanotitania, TiOSO₄

Abstrak

Telah dilakukan penelitian mengenai sintesis nanotitania dengan cara hidrotermal sebagai fungsi suhu. Tujuan dari penelitian ini yaitu untuk mengetahui pengaruh temperatur terhadap pembentukan fasa, struktur dan ukuran partikel TiO₂ menggunakan metode hidrotermal dengan bahan utama yang digunakan yaitu TiOSO₄. Pada penelitian ini menggunakan variasi temperatur 150, 200, 250 dan 300°C dan sampel dikarakterisasi menggunakan X-Ray Diffraction (XRD) dan Scanning Electron Microscopy (SEM). Fasa yang terbentuk yaitu fasa anatase dan rutil yang memiliki struktur tetragonal serta fasa brukit dengan struktur ortorombik. Fasa rutil muncul dominan dalam setiap sampel dan fasa brukit hanya muncul pada suhu 250°C. Fasa anatase memperoleh ukuran partikel sebesar 10-18 nm, dimana semakin tinggi temperatur maka semakin besar ukuran partikelnya. Selanjutnya fasa rutil memperoleh ukuran partikel sebesar 14-25 nm, dimana semakin tinggi temperatur maka semakin kecil ukuran partikelnya.

1. Pendahuluan

Nanoteknologi dapat dianggap sebagai salah satu bidang ilmiah terkemuka saat ini, karena menggabungkan pengetahuan dari bidang fisika, kimia, biologi, kedokteran, informatika dan teknik (Logothetidis, 2012). Nanoteknologi memiliki cakupan yang luas salah satunya adalah nanomaterial (Pokropivny *et al.*, 2007).

Nanomaterial didefinisikan sebagai bahan dengan dimensi fisik yang relevan memiliki sifat kimia dan fisik (sifat termodinamika, dinamis, mekanis, optik, elektronik dan magnetik) yang unik dan berbeda dibandingkan dengan material dalam bentuk limbahnya (Zhang *et al.*, 2003), serta memiliki beberapa jenis yang banyak diteliti diantaranya yaitu nanotitania (Lauterwasser, 2006). Nanotitania atau titanium dioksida (TiO₂) merupakan salah satu bahan katalis yang paling stabil serta memiliki beberapa keunggulan dibandingkan dengan bahan lain diantaranya dapat mengkristalisasi serbuk TiO₂ dan mempercepat transformasi dari fasa anatase ke fasa rutil (Dastan dan Chauré, 2014), harganya relatif murah dan memiliki stabilitas termal tinggi (Hema *et al.*, 2013).

Preparasi nanotitania dapat dilakukan dengan berbagai metode diantaranya metode sol gel (Listanti *et al.*, 2018), kosresipitasi (Nasution dan Fitri, 2018), dan hidrotermal (Setyani dan Wibowo, 2017, Rozman *et al.*, 2019).

* Corresponding author.

E-mail address: sumiyti16@gmail.com

Metode yang digunakan pada penelitian ini yaitu metode hidrotermal. Sintesis hidrotermal dilakukan pada temperatur tertentu dan tekanan tinggi (Ningsih, 2016). Reaksi hidrotermal dilakukan pada suhu tinggi (lebih dari 100°C) dalam *autoclave* yang berfungsi menjaga laju penguapan sama dengan laju kondensasi. Proses hidrotermal memungkinkan pengontrolan ukuran kristal, morfologi dan tingkat aglomerasi dengan pemilihan bahan baku, keasaman (pH), waktu dan suhu (Famia dan Muldarisnur, 2019). Selain itu, reaksi ini berlangsung cukup cepat dengan pengontrolan kristalinitas, ukuran kristal, kemurnian, dan proses pembuatan yang mudah karena hanya memainkan suhu dan waktu sintesis (Ortiz-Landeros *et al.*, 2012). Keuntungannya yaitu dapat dilakukan pada suhu relatif rendah dan menghasilkan produk kristal yang homogen (Retnantiti, 2010), lebih murni dan bebas dislokasi (Cejka *et al.*, 2007). Susilowati (2016) telah melakukan penelitian sintesis dan karakterisasi TiO₂ ditambah dengan nitrogen melalui metode hidrotermal dengan variasi temperatur hidrotermal 110, 120 dan 150°C serta diikuti dengan kalsinasi pada temperatur 450°C. Hasil penelitiannya menunjukkan bahwa kenaikan temperatur mempengaruhi ukuran partikel N-TiO₂ antara lain adanya peningkatan ukuran partikel pada fasa rutil dan adanya penurunan ukuran partikel pada fasa anatase. Pada penelitian ini dilakukan sintesis TiO₂ menggunakan metode hidrotermal dengan bahan utama Titanium (IV) Oksisulfat (TiOSO₄). Variasi temperatur yang dilakukan pada penelitian ini adalah 150, 200, 250 dan 300°C, serta karakterisasi sampel dilakukan menggunakan XRD dan SEM.

2. Metode Penelitian

Serbuk TiOSO₄ sebanyak 5 gram dicampur dengan aquabides sebanyak 50 ml di dalam gelas *beaker*. Selanjutnya dilakukan pemutaran serbuk dan pelarutan menggunakan *magnetic stirrer* sampai larutan menjadi transparan atau jernih, kemudian ditambahkan NH₄OH 10% ke dalam larutan dalam keadaan tetap diputar hingga terbentuk gel serta pH mencapai 8, dan diputar kembali selama 10 menit.

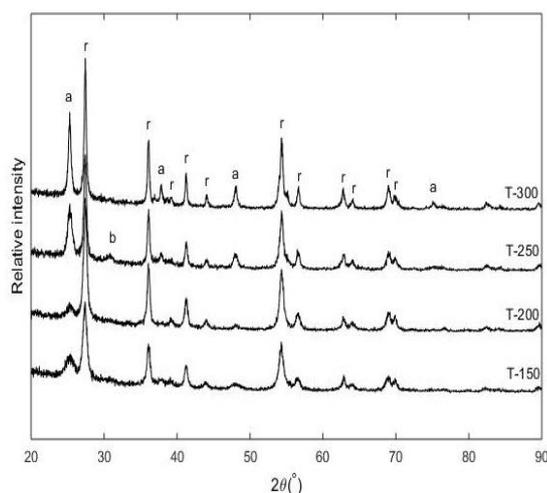
Gel yang terbentuk disaring dan dibilas menggunakan aquades hingga bahan sulfat dan ammonium tidak tersisa lagi, sehingga akan menghasilkan TiO₂ basah. TiO₂ basah ditambahkan aquabides 50 ml, diputar pada alat *centrifuse* selama ± 30 menit. Larutan yang dihasilkan kemudian ditambahkan HNO₃ 5 ml dan isopropil alcohol (IPA) 0,5 ml, lalu dimasukkan ke dalam *autoclave* dan dipanaskan selama ± 18 jam dengan variasi suhu 150, 200, 250 dan 300°C.

Endapan TiO₂ yang terbentuk disaring dan dibilas, selanjutnya dikeringkan pada suhu ruang. Setelah kering digerus hingga halus sampai membentuk serbuk. Kemudian dikeringkan menggunakan oven selama ± 12 jam dan digerus kembali menggunakan mortar untuk kemudian dikarakterisasi.

3. Hasil Dan Pembahasan

Hasil Analisis Kualitatif XRD

Analisis kualitatif dilakukan dengan metode pencocokan *database* kristalografi. Sampel dianalisis menggunakan *High Score Plus (HSP) version 3.0e (3.0.5)* dan dari hasil *output* HSP digunakan sebagai *input* untuk membuat grafik dengan perangkat lunak *MatLab*. Difraktogram hasil analisis kualitatif XRD dapat dilihat pada **Gambar 1** dengan menggunakan panjang gelombang sebesar 1,54059 Å.



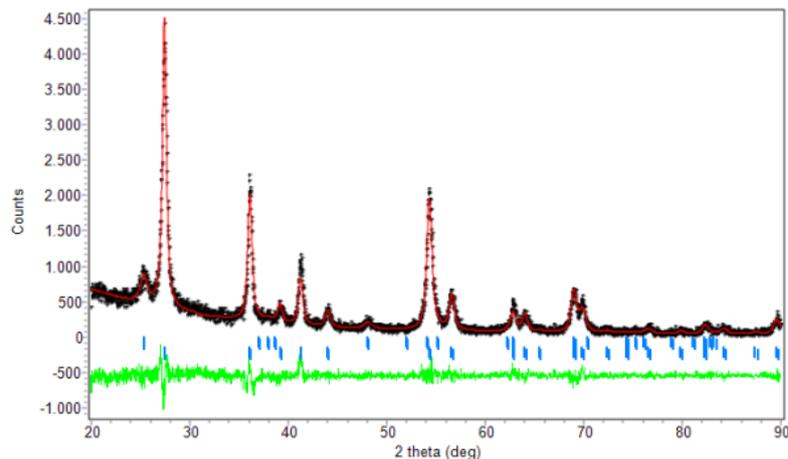
Gambar 1. Difraktogram XRD sampel T-150, T-200, T-250 dan T-300. Legenda: a = anatase; b = brookit; r = rutil.

Berdasarkan difraktogram terlihat bahwa terdapat puncak difraksi tertinggi fasa anatase yaitu pada $2\theta = 25^\circ$, fasa rutil pada $2\theta = 27,43^\circ$ dan fasa brookit pada $2\theta = 30,85^\circ$. Pangkalan data yang digunakan untuk identifikasi fasa adalah ICSD 01-086-1156 untuk fasa anatase, COD 96-900-7433 untuk fasa rutil dan COD 96-900-4139 untuk fasa brookit. Hasil puncak tertinggi pada fasa anatase sesuai dengan penelitian Manurung, *et al* (2020). Untuk fasa rutil dan brookit tidak jauh berbeda dengan penelitian Abdel-Azim, *et al* (2014).

Hal yang menarik pada penelitian ini adalah kemunculan fasa rutil yang dominan pada setiap sampel. Normalnya fasa rutil terbentuk di atas suhu 600°C (Mahshid *et al.*, 2007). Hal ini dapat dilihat dari titik leleh sampel. Sebagaimana diketahui semakin kecil ukuran partikel, maka semakin rendah titik leleh suatu sampel (Manurung, 2018). Metode preparasi hidrotermal juga memungkinkan memperoleh fasa rutil pada suhu yang lebih rendah jika dikaitkan antara hubungan tekanan dengan temperatur. Hal yang menarik lainnya yaitu fasa brookit yang hanya

muncul pada sampel T-250. Fasa brukit diperoleh dari kristalisasi hidrotermal pada suhu 200-250°C (Zheng *et al.*, 2000).

Hasil Analisis Kuantitatif XRD



Gambar 2. Hasil *refinement* data XRD TiO₂ sampel T-250.

Analisis kuantitatif dilakukan dengan cara *refinement* data XRD menggunakan metode *Rietveld* dan perangkat lunak Rietica. Sebelum analisis dilakukan, file *input* diketik dalam program. Selanjutnya program dijalankan dan diperoleh hasil sebagai file keluaran. Model *refinement* yang digunakan untuk struktur kristal anatase adalah Djerdj and Tonejc (2006), rutil menggunakan Howard *et al* (1991) dan brukit menggunakan Meagher and Lager (1979). Hasil *refinement* data XRD TiO₂ pada sampel T-250 dapat dilihat pada **Gambar 2**. Yang perlu diperhatikan dalam melakukan penghalusan yaitu nilai *GoF* (*Goodness of Fit*). Nilai *GoF* dapat diterima jika bernilai $2 \leq 4$ (Kisi, 1994), selain itu untuk nilai R_{wp} , R_p , dan R_{exp} harus kurang dari 20 (Young, 1993). Berdasarkan hasil penghalusan secara keseluruhan nilai *GoF* yang dihasilkan kurang dari 1, dan nilai R_{wp} , R_p , dan R_{exp} kurang dari 20, maka nilai ini memenuhi standar metode *Rietveld*.

Dari nilai *GoF* yang kurang dari 1 itu artinya kristal TiO₂ memiliki kemiripan struktur cukup tinggi dengan *database*. Berdasarkan *database*, fasa anatase memiliki struktur tetragonal dengan grup ruang 141/A M D, fasa rutil memiliki struktur tetragonal dengan grup ruang P42/M N M dan fasa brukit memiliki struktur ortorombik dengan grup ruang P B C A.

Hasil Analisis Ukuran Partikel

Untuk mengetahui ukuran partikel dilakukan analisis menggunakan puncak tertinggi dalam hal ini menggunakan puncak anatase dan rutil. Puncak-puncak tersebut digunakan untuk mencari nilai *Full-Width at Half Maximum* (FWHM), dimana nilai FWHM digunakan untuk menghitung ukuran partikel dengan menggunakan persamaan *Scherrer* pada **Persamaan 1**. Dimana semakin kecil nilai FWHM maka ukuran kristal semakin besar.

$$L = \frac{0,9\lambda}{B \cos \theta} \quad (1)$$

dengan L adalah diameter (nm), 0,9 adalah konstanta *Scherrer*, λ adalah panjang gelombang sinar-X, θ adalah sudut difraksi dan B adalah pelebaran berdasarkan *Full-Width at Half Maximum* (FWHM) puncak difraksi dalam radian (Cullity, 1978).

Berdasarkan perhitungan yang dilakukan, terlihat bahwa ukuran partikel pada fasa anatase seiring naiknya suhu pemanasan maka semakin besar ukuran partikel yang dihasilkan. Adapun ukuran partikel yang diperoleh dari semua sampel yaitu antara 10-18 nm. Ukuran partikel pada sampel T-150 memperoleh ukuran partikel sebesar 2,17 nm. Hasil tersebut tidak dapat dipertanggung jawabkan karena jumlah anatase yang digunakan kurang representatif dalam arti lebih cenderung amorph. Adapun hasil perhitungan ukuran partikel fasa anatase dapat dilihat pada **Tabel 1**.

Tabel 1. Perhitungan ukuran partikel fasa anatase

Sampel	2 θ (°)	θ (°)	FWHM (rad)	L (nm)
T-200	25,40	12,700	0,01344	10,58
T-250	25,28	12,640	0,01309	10,86
T-300	25,28	12,635	0,00764	18,59

Tabel 2. Perhitungan ukuran partikel fasa rutil

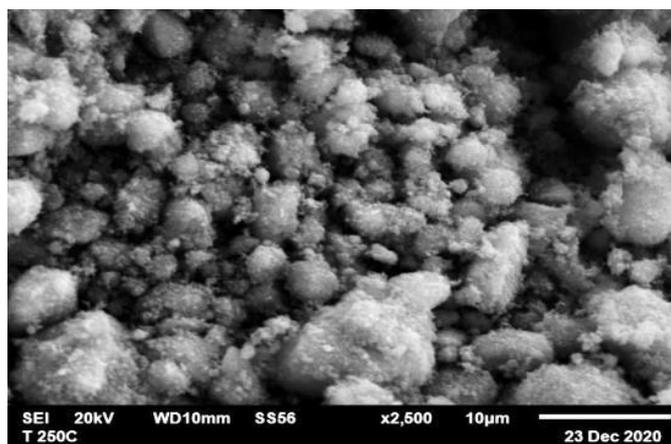
Sampel	$2\theta(^{\circ})$	$\theta(^{\circ})$	FWHM (rad)	L (nm)
T-150	27,36	13,68	0,00553	25,79
T-200	27,42	13,71	0,00979	14,58
T-250	27,40	13,70	0,00731	19,52
T-300	27,42	13,71	0,00545	19,96

Hasil perhitungan ukuran partikel fasa rutil dapat dilihat pada **Tabel 2**. Pada tabel tersebut terlihat bahwa ukuran partikel mengecil pada sampel T-200 dan kembali naik pada sampel T-250. Nilai FWHM berbanding terbalik dengan ukuran partikel dimana semakin naiknya suhu, maka semakin kecil nilai FWHM dan ukuran partikelnya semakin besar. Ukuran partikel fasa rutil secara keseluruhan diperoleh antara 14-25 nm.

Ukuran partikel dari tiga fasa nanokristalin sama, fasa anatase paling stabil secara termodinamika pada ukuran kurang dari 11 nm dan fasa rutil paling stabil pada ukuran lebih dari 35 nm (Zhang dan Julian, 2000).

Hasil Analisis SEM

Analisis SEM dilakukan untuk mengetahui bentuk morfologi dari TiO_2 . Sampel yang dikarakterisasi yaitu sampel T-250, selanjutnya dianalisis menggunakan perangkat lunak *ImageJ*. Morfologi hasil karakterisasi SEM dapat dilihat pada **Gambar 3**.

**Gambar 3.** Morfologi hasil uji SEM

Gambar 3 terdapat penumpukan partikel dan terlihat butir-butir yang cukup kecil. Analisis sampel diambil 10 partikel dengan ukuran berbeda. Ukuran rata-rata butir adalah $6,858 \mu\text{m}$.

4. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa variasi suhu hidrotermal berpengaruh terhadap pembentukan fasa dan ukuran partikel TiO_2 . Fasa yang paling dominan muncul adalah fasa rutil. Ukuran partikel yang diperoleh yaitu untuk fasa anatase 10-18 nm dan fasa rutil sebesar 14-25 nm.

5. Daftar Pustaka

- Abdel-Azim, S. M., Abdoel-Gheit, A. K., Ahmed, S. M., El-Desouki, D. S., and Abdel-Mottaleb, M. S. A. 2014. Preparation and application of mesoporous nanotitania photocatalysts using different templates and pH media. *Internasional Journal of Photoenergy*. Vol. 2014. pp. 1-11.
- Cejka, J., Bekkum, H., Corma, A. and Schuth, F. 2007. *Introduction to zeolite Science an Practice; 3rd Revised Edition*. Vol. 168. pp. 39-103.
- Cullity, B. D. 1978. *Elements of X-Ray Diffraction*. Departement of Metalulurgical Engeneering and Material Science. Addison-Wesley Publishing Company, Inc: USA.
- Dastan, D., and Chaure, N. B. 2014. Influence of surfactants on TiO_2 nanoparticles grown by sol-gel technique. *Journal of Materials*. Vol. 2. pp. 21-24.
- Djerdj, I., and Tonejc, A. M. 2006. Strucrutral investigations of nanocrystalline TiO_2 samples. *Journal of Alloys and Compounds*. Vol. 413. pp. 159-174.

Sumiyati, Manurung P, dan Suprihatin, 2021, Sintesis Nanotitania dengan Cara Hidrotermal sebagai Fungsi Suhu, *Journal of Energy, Material, and Instrumentation Technology*, Vol. 2, No. 4, 2021

- Famia, A.S. dan Muldarisnur. 2019. Pengaruh temperatur sintesis hidrotermal terhadap diameter nanopartikel seng oksida. *Jurnal Fisika Unand*. Vol. 8. pp. 127-132.
- Hema, M., Yelil, A., Tamil, P. and Anbarasan, R. 2013. Titania nanoparticles synthesized by sol-gel technique. *Chemical Science Transactions*. Vol. 2. pp. 239-245.
- Howard, C. J., Sabine, T. M. and Dickson, F. 1991. Structural and thermal parameters for rutile and anatase. *Acta Crystallographica Section B: Structural Science*. Vol. 47. pp. 462-468.
- Kisi, E. H. 1994. Rietveld analysis of powder diffraction patterns. In: *Material Forum*. Vol. 18. pp. 135-155.
- Lauterwasser, C. 2006. *Opportunities and Risks of Nanotechnologies*. Allianz AG: Munchen.
- Listanti, A., Taufiq, A., Hidayat, A., dan Sunaryono, S. 2018. Investigasi struktur dan energi band gap partikel nano TiO₂ hasil sintesis menggunakan metode sol-gel. *Journal of Physical and Engineering*. Vol. 3. pp. 8-15.
- Logothetidis, S. 2012. Nanotechnology: Principles and Applications. *Nanostructured Materials and Their Applications*. Springer, Berlin, Heidelberg.
- Mahshid, S., Askari, M., and Ghamsari, M. S. 2007. Synthesis of TiO₂ nanoparticles by hydrolysis and peptization of titanium isopropoxide solution. *Journal of Materials Processing Technology*. Vol. 189. pp. 296-300.
- Manurung, P. G. 2018. *Nanomaterial-Tinjauan Ilmu Masa Kini Edisi 1*. Penerbit ANDI. Yogyakarta.
- Manurung, P., Situmeang, R., Sinuhaji, P., and Sembiring, S. 2020. Effect of sulfur doped nanotitania for degradation of remazol yellow and phenol. *Asian Journal of Chemistry*. Vol. 32. pp. 3019-3023.
- Meagher, E P, and George A Lager. 1979. Thermal in the TiO₂, polymorphs : and refinement of the crystal structures of rutile brookite at high temperature. *Canadian Mineralogist* 17: 77-85.
- Nasution, N. dan Fitri A. 2018. Sintesis nanopartikel TiO₂ fasa rutile dengan metode kopresipitasi. *Jurnal Ilmu Fisika dan Teknologi*. Vol. 2. pp. 18-25.
- Ningsih, S.K.W. 2016. Sintesis Anorganik. Universitas Negeri Padang Press. Padang.
- Ortiz-Landeros, J., Gomez-Yanez, C., Lopez-Juarez, R., Devalos-Velasio, I., and Pfeiffer, H. 2012. Synthesis of advanced ceramics by hydrothermal crystallization and modified related methods. *Journal of Advanced Ceramics*. Vol. 1. pp. 204-220.
- Pokropivny, V., Lohmos, R., Hussainova, I., Pokropivny, A. and Vlassov, S. 2007. *Introduction to Nanomaterials and Nanotechnology*. Tartu University Press. Ukraine.
- Retnantiti, M.D. 2010. Sintesis Hidrotermal dan Karakterisasi Barium Titanat (BaTiO₃). Skripsi. Institut Pertanian Bogor. Bogor.
- Rozman, N., Tobaldi, D.V., Puliyalil, H., Labrincha, J.A., Legat, A., and Andrijana, S.S. 2019. Hydrothermal Synthesis of Rare-Earth Modified Titania: Influence on Phase Composition, Optical Properties, and Photocatalytic Activity. *Materials*. Vol. 12. pp. 713.
- Setyani, A., dan Wibowo, E.A.P. 2017. Fabrikasi nanotubes titanium dioksida (TiO₂) menggunakan metode hidrotermal. *Jurnal Penelitian dan Pengembangan Ilmu Kimia*. Vol. 3. pp. 20-26.
- Susilowati, P. 2016. Sintesis dan karakterisasi TiO₂ terhadap nitrogen melalui metode hidrotermal dengan variasi suhu dan kalsinasi. *Skripsi*. Universitas Negeri Yogyakarta. Yogyakarta.
- Young, R. A. 1993. *The Rietveld Method*. Oxford University Press. New York.
- Zhang, Hengzhong, and Julian F. Banfield. 2000. Understanding polymorphic phase transformation behavior during growth of nanocrystalline aggregates: insights from TiO₂. *Journal of Physical Chemistry B*. Vol. 104. pp. 3481-3487.
- Zhang, J., Wang, Z., Liu, J., Chen, S. dan Liu, G. 2003. *Self-Assembled Nanostructures*. Springer Science and Business Media. New York.
- Zheng, Y., Shi, E., Cui, S., Li, W. and Hu, X. 2000. Hydrothermal preparation and characterization of brookite-type TiO₂ nanocrystallites. *Journal of Materials Science Letters*. Vol. 19. pp. 1445-1448.