

# Pergeseran $2\theta$ pada Pola Difraksi Sinar-X $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$ Akibat Variasi $x$

Mohammad Irfan Arganata dan Irminda Kris Murwani

Departemen Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

*e-mail:* irmina@chem.its.ac.id

**Abstrak**—Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  ( $x = 0; 0,025; 0,050; 0,075; 0,100; 0,150$ ) dengan metode sol-gel. Struktur kristal padatan dikarakterisasi dengan Difraksi Sinar-X (XRD). Hasil XRD menunjukkan bahwa semua padatan  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  memiliki struktur tetragonal. Pada pola difraksi hasil karakterisasi  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  menunjukkan tidak ditemukan puncak-puncak khas NiO. Modifikasi doping pada  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  menunjukkan adanya pergeseran  $2\theta$ . Pergeseran terjadi pada  $2\theta$  tiga puncak utama yaitu 27,050-27,400, 40,300-40,557 dan 53,500-53,850.

**Kata Kunci**—Doping,  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$ , XRD.

## I. PENDAHULUAN

LOGAM oksida telah lama dikembangkan sebagai katalis heterogen karena memiliki keasaman dan stabilitas termal yang tinggi [1]. Salah satu contoh logam yang banyak dikembangkan sebagai katalis heterogen adalah logam Nikel (Ni) [2].

Metode sol-gel merupakan metode yang tepat untuk sintesis katalis karena memiliki banyak keunggulan dibandingkan metode yang lain. Keunggulan dari metode sol-gel adalah dapat dilakukan pada suhu yang relatif rendah serta lebih mudah dalam mengontrol ukuran pori, volume dan distribusi ukuran pori suatu katalis [3]. Salah satu modifikasi katalis yang dapat dilakukan dengan metode sol-gel adalah *doping* katalis [4]. *Doping* merupakan salah satu proses sintesis yang dilakukan dengan cara mencampurkan secara langsung prekursor yang digunakan dengan perbandingan komposisi tertentu yang bertujuan untuk mengubah atau memperbaiki sifat tertentu katalis. Melalui proses *doping* dengan metode sol-gel, penyebaran sisi aktif logam dapat ditingkatkan [5]. Modifikasi  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  dengan *doping* logam Ni diharapkan dapat meningkatkan luas permukaan.

Karakterisasi *X-ray Diffraction* (XRD) bertujuan untuk menentukan struktur kristal atau kristalinitas dari suatu padatan. XRD menjadi teknik yang efektif dan mendasar untuk mengevaluasi sifat-sifat fasa dan ukuran kristal [6].

## II. URAIAN PENELITIAN

### A. Alat dan Bahan

#### 1) Alat

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini terbagi menjadi dua, yaitu peralatan sederhana dan instrumen. Peralatan sederhana yang digunakan meliputi peralatan yang terbuat dari polietilen dan gelas. Instrumen yang dipakai meliputi oven, *furnace*, difraktometer sinar-X (XRD) Philips X-Pert.

#### 2) Bahan

Bahan yang dipakai pada penelitian ini merupakan bahan kimia yang memiliki kemurnian tinggi atau disebut pro analisis (p.a) yaitu Mg turning (*Sigma Aldrich*, 99,98%), Nikel (II) Asetat Tetrahidrat (*Sigma Aldrich*, 99,98%), Metanol (*Merck*, 99,9%), HF (*Merck*, 48%),

#### B. Prosedur Kerja

#### 3) Sintesis Padatan $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$

Padatan  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  disintesis melalui metode sol gel sesuai penelitian yang dilakukan oleh Wuttke [1] yaitu dengan mereaksikan secara stoikiometri Mg turning direaksikan dengan metanol melalui pemanasan kondisi refluks hingga terbentuk  $Mg(OCH_3)_2$  yang ditandai dengan terbentuknya emulsi. Kemudian ditambahkan HF 48% sedikit demi sedikit ke dalam emulsi tersebut sesuai dengan perhitungan stoikiometri. Campuran diaduk dengan *magnetic stirrer* hingga terbentuk sol homogen. Sol yang diperoleh kemudian diperam (*diaging*) pada suhu kamar hingga terbentuk gel yang stabil. Gel yang didapatkan kemudian dikeringkan dan dikalsinasi. Padatan hasil pengeringan digerus sehingga didapatkan serbuk yang siap untuk dikarakterisasi.

#### • Sintesis Padatan $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$

Sintesis padatan  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  dengan  $x = 0,025; 0,05; 0,075; 0,1$  dan  $0,15$  dilakukan dengan cara yang sama dengan sintesis  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$ , hanya sebelum ditambahkan larutan HF 48%, ditambahkan terlebih dahulu larutan  $Ni^{2+}$  sesuai dengan kebutuhan. Kemudian dilakukan pemanasan kondisi refluks. Selanjutnya, ditambahkan HF 48% sedikit demi sedikit sesuai perhitungan stoikiometri, diaduk dengan *magnetic stirrer* hingga terbentuk sol yang homogen. Tahap berikutnya sama dengan tahapan sintesis  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  hingga didapatkan serbuk yang siap dikarakterisasi lebih lanjut.

#### 4) Karakterisasi Struktur Kristal dengan Difraksi Sinar-X (XRD)

Karakterisasi struktur kristal  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  ( $x = 0; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,15$ ) ditentukan dengan instrumen difraktometer sinar-X (XRD). Padatan hasil sintesis ditumbuk halus lalu diambil  $\pm 1$  gram, diletakkan pada sampel *holder* yang telah dibersihkan sebelumnya dan diratakan permukaannya. Pada pengambilan data dengan instrumen XRD digunakan sumber radiasi  $CuK_{\alpha}$  ( $\lambda = 1,54\text{\AA}$ ) dan pengukuran pada sudut  $2\theta$  antara  $20-80^\circ$  dengan inkremen  $0,05$ . Pola difraksi yang diperoleh selanjutnya dicocokkan dengan *database* pada JCPDS-*Internal Centre of Diffraction Data* PCPDFWIN tahun 2001.

### III. HASIL DAN DISKUS

#### A. Hasil Sintesis

##### 1) Hasil Sintesis Padatan $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$

Sintesis padatan  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  dilakukan dengan metode sol-gel, merujuk pada penelitian Wuttke (2008). Metode sol-gel dipilih karena keuntungan yang dimilikinya, yaitu reaksi dapat berlangsung pada suhu relatif rendah dan dapat menghasilkan padatan dengan volume dan distribusi ukuran pori yang homogen [7]. Kelebihan metode sol-gel juga dilaporkan Perego dan Villa [3] yaitu dapat menghasilkan padatan dengan homogenitas tinggi dan memiliki luas permukaan besar.

Metode sol-gel merupakan metode dengan reaksi pembentukan gel dari sol pada suhu kamar [8]. Menurut Knözinger [5], metode sol-gel dilakukan dengan dua tahap reaksi, yaitu reaksi hidrolisis logam alkoksida dan reaksi polimerisasi. Reaksi polimerisasi kondensasi merupakan reaksi yang akan menghasilkan gel. Pada penelitian ini, tahapan sintesis padatan diawali dengan pembentukan logam alkoksida  $Mg(OCH_3)_2$  dengan mereaksikan prekursor  $Mg$  turning dan metanol. Pelarut pada tahap pembentukan magnesium metoksida dan *gelating agent* pada reaksi polimerisasi. Menurut Wuttke [9], pemilihan pelarut sangat penting karena pelarut dibutuhkan selama reaksi polimerisasi berlangsung, sehingga dipilih pelarut yang tidak mengalami pengurangan jumlah selama reaksi berlangsung.

Reaksi pembentukan  $Mg(OCH_3)_2$  dilakukan dalam refluks. Terbentuknya magnesium metoksida ditandai dengan terbentuknya emulsi putih. Pembentukan magnesium alkoksida pada reaksi ini bertujuan untuk memudahkan reaksi hidrolisis [10]. Tahap selanjutnya adalah pembentukan sol. Prekursor magnesium metoksida direaksikan dengan Asam fluorida (HF) sambil diaduk agar prekursor terdispersi secara merata. Penambahan HF dan pengadukan secara simultan menyebabkan terbentuknya sol. Indikasi terbentuknya sol adalah ketika homogenitas emulsi menurun.

Sol yang terbentuk kemudian diaduk terus-menerus pada suhu kamar. Pada saat pengadukan inilah terjadi reaksi polimerisasi atau yang disebut juga proses gelasi untuk pembentukan gel. Struktur gel yang terbentuk merupakan jaringan mirip polimer O-Mg-F yang terdiri dari ikatan hidrogen dan Van der Waals.

Gel yang dihasilkan pada tahap reaksi polimerisasi belum stabil sehingga diperlukan proses pemeraman (*aging*) pada suhu kamar. Setelah proses pemeraman didapatkan gel stabil. Selanjutnya, gel dikeringkan, sehingga didapat gel kering (*Xerogel*) berwarna putih. Proses selanjutnya adalah kalsinasi *xerogel*. Pemilihan suhu kalsinasi didasarkan pada penelitian Radityo (2016). Kalsinasi bertujuan agar terjadi dekomposisi jaringan gel sehingga diperoleh padatan yang diinginkan [3].

##### 2) Hasil Sintesis Padatan $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$

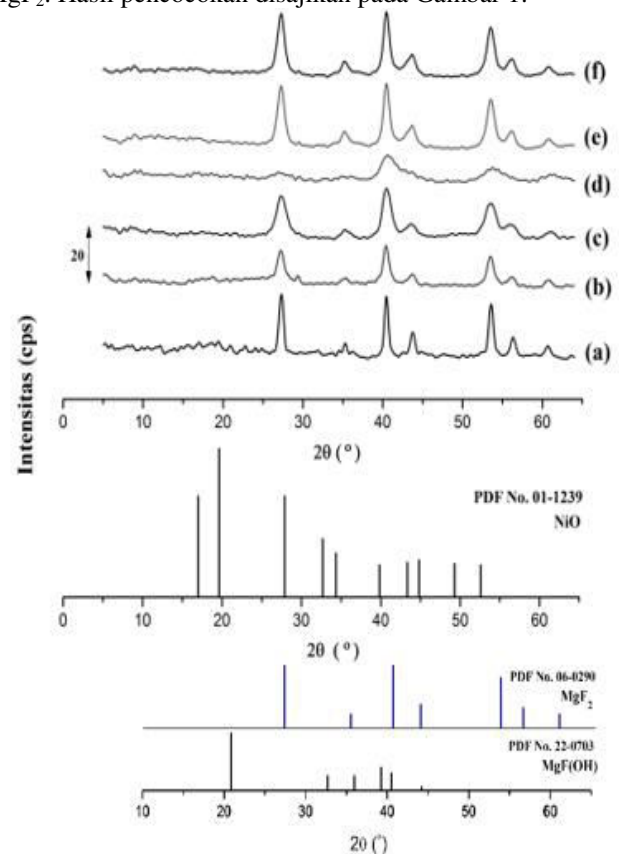
Menurut Murwani [11], proses *doping* dapat meningkatkan keasaman padatan tersebut. Stabilitas yang tinggi juga dapat diperoleh melalui metode *doping*. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan modifikasi padatan  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  dengan metode *doping*. Telah diteliti oleh Ferreira [12], bahwa logam Nikel (Ni) dapat berperan sebagai *dopant* karena logam Ni bersifat asam Lewis atau akseptor pasangan elektron [14]. Oleh karena itu, pada penelitian ini digunakan logam Ni sebagai *dopant* untuk

modifikasi padatan  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  dengan variasi  $x = 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; \text{ dan } 0,15$ .

Tahapan sintesis padatan  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  analog dengan tahapan sintesis  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$ , diawali dengan pembentukan logam alkoksida  $Mg(OCH_3)_2$  hingga dihasilkan padatan berwarna hijau (*xerogel*). Semakin besar penambahan kadar  $Ni^{2+}$  dalam sampel, maka intensitas warna hijau yang dihasilkan semakin kuat. Selanjutnya, padatan hijau ini digerus dan dilakukan kalsinasi pada suhu  $325\text{ }^\circ\text{C}$  agar didapatkan padatan berupa sehingga mudah untuk dikarakterisasi lebih lanjut.

#### B. Karakterisasi Struktur Kristal dengan Difraktometer Sinar-X (XRD)

Padatan yang didapat selanjutnya dikarakterisasi dengan difraktometer sinar-X. Pola difraksi  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  hasil sintesis kemudian dicocokkan dengan database  $MgF_2$ ,  $MgFOH$ ,  $NiO$  dari *database JCPDS International Centre of Diffraction Data* tahun 2001 dengan program PCPDFWIN. Setelah dicocokkan, pola difraksi  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$  hanya memiliki kecocokan dengan database pola difraksi  $MgF_2$ . Hasil pencocokan disajikan pada Gambar 1.



Gambar 1. Pola difraksi  $Mg_{1-x}Ni_xF_{1,985}(OH)_{0,015}$ , database  $MgF_2$  (PDF No. 06-0290),  $NiO$  (PDF No. 01-1239) dan  $MgFOH$  (PDF No. 22-0703).

Hasil pencocokan menunjukkan tingkat kecocokan tinggi dengan database  $MgF_2$  PDF No. 06-0290 dengan struktur kristal tetragonal. Indikasi kecocokan ditentukan dengan munculnya tiga puncak khas  $MgF_2$  pada  $2\theta$   $27,385^\circ$ ,  $40,557^\circ$  dan  $53,603^\circ$ . Pola difraksi juga dicocokkan dengan database  $MgF(OH)$  dan  $MgO$  namun hasil pencocokan menunjukkan tidak terdapat puncak yang sesuai. Pola difraksi padatan  $MgF_{1,985}(OH)_{0,015}$  memiliki tingkat kecocokan yang lebih tinggi dengan database  $MgF_2$  dibandingkan dengan  $MgFOH$  kemungkinan karena perbandingan jumlah mol fluoride dan mol hidroksi yang digunakan untuk sintesis

$\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  lebih mirip dengan  $\text{MgF}_2$  daripada  $\text{MgFOH}$ .

Hasil pencocokan dengan database NiO (PDF No. 01-1239) seperti pada Gambar 1, tidak ditemukan puncak-puncak khas NiO. Hal ini karena *doping* Ni masih dalam toleransi yang dapat diterima  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  dan mampu menggantikan Mg dengan baik pada struktur  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$ . Hasil ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Luisa dkk [13] bahwa *doping* logam Ni dalam Seng hidrosinitrat (ZHN) tidak memunculkan puncak khas dari NiO maupun  $\text{Ni}(\text{OH})_2$  karena logam Ni terdoping dengan baik dan masuk pada kerangka struktur ZHN.

Pola difraksi  $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{F}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  ( $x = 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; \text{ dan } 0,15$ ) menunjukkan adanya pengaruh *doping* logam Ni terhadap pergeseran  $2\theta$ . Menurut Tronca dkk. [14] menyatakan bahwa *doping* Ni menyebabkan pergeseran nilai  $2\theta$  bila dibandingkan dengan padatan yang tidak *didoping*. Hal ini mengindikasikan bahwa terjadi penggantian kation  $\text{Ni}^{2+}$  kedalam kisi  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$ .

Tabel 1.  
Pergeseran  $2\theta$  pada pola difraksi

Variasi nilai x pada $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{F}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$	Nilai $2\theta$ tiga puncak utama sesuai standar $\text{MgF}_2$ ( $^\circ$ )		
0	27,385	40,557	53,603
0,025	27,350	40,450	53,650
0,050	27,400	40,400	53,700
0,075	27,050	40,450	53,850
0,100	27,350	40,450	53,500
0,150	27,300	40,300	53,550

#### IV. KESIMPULAN

Berdasarkan data dan pembahasan yang telah dilakukan, dapat diambil kesimpulan bahwa padatan  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  dan  $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{F}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  ( $x = 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; \text{ dan } 0,15$ ) dapat disintesis melalui metode sol-gel. Berdasarkan hasil karakterisasi dengan XRD padatan  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  dan  $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{F}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  ( $x = 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; \text{ dan } 0,15$ ) memiliki struktur yang sama dengan  $\text{MgF}_2$ , yaitu struktur tetragonal. Pada pola difraksi hasil karakterisasi  $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{F}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  menunjukkan tidak ditemukan puncak-puncak khas NiO. Hal ini karena *doping* Ni masih dalam toleransi yang dapat diterima  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$  dan mampu menggantikan Mg pada struktur  $\text{MgF}_{1,985}(\text{OH})_{0,015}$

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Pendidikan Tinggi, Departemen Pendidikan dan Kebudayaan Republik Indonesia yang telah memberikan dukungan finansial melalui Beasiswa Bidik Misi tahun 2013-2017, Dana penelitian kerjasama internasional dengan Humbolt University, Berlin dan semua pihak yang telah membantu dalam penelitian ini.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] Q. A'yuni, "Sintesis Katalis  $\text{MgF}_2$  Metode Sol Gel dengan Gelating Agnet Etanol dan Etilen Glikol serta Kinerjanya pada Reaksi Asetilasi Gliserol," Institut Teknologi Sepuluh Nopember, 2015.
- [2] Z. Wathoni A, "Sintesis, Aktivitas dan Selektivitas Katalis NiO,  $\text{CaF}_2$  dan NiO/  $\text{CaF}_2$  pada Reaksi Pembentukan Vitamin E," *J. Sains dan Seni ITS*, pp. C14–C16, 2012.
- [3] C. Perego and P. Villa, "Catalyst preparation methods," *Catal. Today*, vol. 34, no. 3, pp. 281–305, 1997.
- [4] M. Campanati, G. Fornasari, and A. Vaccari, "Fundamentals in the Preparation of Heterogeneous Catalysts," *Catal. Today*, vol. 77, pp. 299–314, 2003.
- [5] G. Ertl and H. Knözinger, *Handbook of Heterogeneous Catalysis*. New York: John Wiley & Sons, 1991.
- [6] A. D. McNaught and A. Wilkinson, *IUPAC: Compendium of Chemical Terminology secon ed., Blackwell Scientific Publications*. Oxford, 1997.
- [7] W. Wojciechowska, A. Przystajko and M. Zieliński, "CO Oxidation Catalysts Based on Copper and Manganese or Cobalt Oxides Supported on  $\text{MgF}_2$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ," *Catal. Today*, vol. 119, pp. 338–341, 2007.
- [8] H. Podbielska and A. Ulatowska-Jarza, "Sol-Gel Technology for Biomedical Engineering," *Bull. Polish Acad. Sci. Teh. Sci.*, vol. 53, pp. 261–271, 2005.
- [9] S. Wuttke and et al, "Novel Sol-Gel Synthesis of Acidic  $\text{MgF}_2-x(\text{OH})_x$  Materials," *Chem. – Eur. J.*, vol. 14, no. 36, pp. 11488–11499, 2008.
- [10] J. K. Murthy, U. Groß, S. Rüdiger, and E. Kemnitz, "FeF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>: Novel Lewis Acidic Catalyst System," *Appl. Catal.*, vol. 278, pp. 133–138, 2004.
- [11] I. K. Murwani and K. K. E. Scheurell, "Liquid Phase Oxidation of Ethylbenzene on Pure and Metal Doped HS-AlF<sub>3</sub>," *Catal. Commun.*, vol. 10, pp. 227–231, 2008.
- [12] P. Ferreira, I. M. Fonseca, A. M. Ramos, J. Vital, and J. E. Castanheiro, "Esterification of glycerol with acetic acid over dodecamolybdophosphoric acid encaged in USY zeolite," *Catal. Commun.*, vol. 10, pp. 481–484, 2009.
- [13] M. L. Testa, V. La Parola, L. F. Liotta, and A. M. Venezia, "Screening of different solid acid catalysts for glycerol acetylation," *J. Mol. Catal. A Chem.*, vol. 367, pp. 69–76, Feb. 2013.
- [14] S. B. Tronca, S. Wuttke, E. Kemnitz, S. M. Coman, and V. I. Parvulescu, "Hydroxylated magnesium fluorides as environmentally friendly catalysts for glycerol acetylation," *Appl. Catal. B Environ.*, vol. 107, pp. 260–267, 2011.