

Sintesis dan Difraktogram $Mg_{1-x}Cu_xF_2$

Lisa Aini Isyakdia Khotiba dan Irmina K. Murwani
Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)
Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111
E-mail: irmina@chem.its.ac.id

Abstrak—Pada penelitian ini dilakukan sintesis padatan MgF_2 dan $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x=0,025; 0,05; 0,1$ dan $0,15$) dengan metode sol-gel dan dikarakterisasi struktur padatan dengan difraksi sinar-X. Difraktogram MgF_2 hasil sintesis menunjukkan bahwa katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ memiliki struktur kristal seperti MgF_2 , yaitu tetragonal. Difraktogram padatan $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ menunjukkan adanya pengaruh *doping* logam terhadap pergeseran puncak 2θ dan adanya kapasitas *doping* pada MgF_2 yang ditandai dengan munculnya puncak CuO pada *doping* 0,05; 0,10 dan 0,15 mol Cu.

Kata Kunci— MgF_2 , *Doping*, Difraksi sinar-X

I. PENDAHULUAN

Kebudayaan tembaga (Cu) di alam sangat melimpah dan sudah banyak dimanfaatkan dalam dunia industri dan sains. Cu memiliki sifat keasaman yang relatif tinggi dan dapat digunakan sebagai katalis asam heterogen. Beberapa katalis dari logam Cu sudah mulai dikembangkan. MgF_2 juga merupakan katalis asam heterogen yang memiliki stabilitas termal yang tinggi [1]. Teknik karakterisasi yang dilakukan terhadap katalis adalah difraksi sinar X (XRD). Dari XRD dapat diketahui sifat-sifat fasa kristal dan ukuran kristal [2].

Sol gel adalah salah satu metode sintesis katalis yang baik untuk mengontrol bentuk, ukuran dan komposisi logam dalam bentuk nano [3]. *Doping* adalah preparasi katalis dengan cara penambahan secara berurutan antara logam dan prekursor yang digunakan dalam sintesis katalis. Dengan cara ini diharapkan dapat meningkatkan sisi aktif dari katalis. Oleh karena itu dilakukan *doping* logam Cu kedalam MgF_2 dan dilakukan variasi jumlah logam Cu untuk mengetahui jumlah optimum *doping* logam sebagai padatan katalis.

II. METODOLOGI PENELITIAN

A. Sintesis Padatan MgF_2 dan $Mg_{1-x}Cu_xF_2$

Sintesis padatan MgF_2 dibuat sesuai dengan metode yang dilakukan oleh Murwani dkk. [4], yaitu dengan cara melarutkan $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dalam etilen glikol dan HF sesuai perhitungan stoikiometri hingga terbentuk gel. Gel yang diperoleh kemudian diperam pada temperatur kamar hingga stabil, selanjutnya didekantasi. Gel yang diperoleh selanjutnya dicuci dengan aquades. Gel tersebut kemudian dikeringkan dan dikalsinasi pada suhu $400^\circ C$.

Sintesis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ dilakukan dengan cara yang sama seperti diatas, akan tetapi dimasukkan sejumlah mol prekursor

Cu sebagai logam dopant saat pelarutan $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dalam etilen glikol. Jumlah mol Cu yang digunakan untuk sintesis katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ yaitu 0,025; 0,05; 0,1 dan 0,15 mol.

B. Karakterisasi Struktur dengan X-Ray Diffraction

Padatan yang diperoleh yaitu MgF_2 dan $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ dikarakterisasi strukturnya menggunakan difraktometer sinar-X. Karakterisasi dengan XRD dilakukan dengan cara sampel katalis sebanyak ± 1 gram digerus sampai halus, lalu diletakkan pada *sample holder*, dipadatkan dan diratakan permukaannya. Selanjutnya dikarakterisasi dengan Difraktometer, Sinar-X dengan sumber radiasi Cu K α ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$) dengan sudut 2θ antara $20-80^\circ$ dan inkremen sebesar $0,05^\circ$. Difraktogram yang diperoleh dicocokkan dengan standar program PCPDFWIN dari *database JCPDS-International Centre of diffraction* tahun 2001.

III. HASIL DAN DISKUSI

A. Padatan MgF_2

Pada sintesis katalis ini digunakan metode sol-gel. Menurut Perego dan Villa (1997), metode sol-gel memiliki banyak kelebihan yaitu mendapatkan padatan hasil sintesis yang memiliki homogenitas yang tinggi, volume pori dan luas permukaan yang besar serta distribusi ukuran pori yang merata.

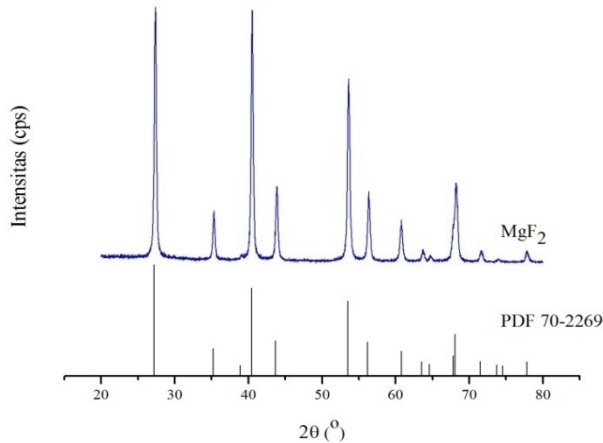
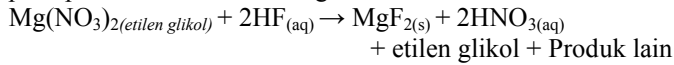
Sintesis katalis ini mengacu pada penelitian yang telah dilakukan oleh Murwani dkk., (2004) dalam sintesis MgF_2 . Pelarut yang digunakan dalam penelitian ini berbeda dengan pelarut yang digunakan oleh Murwani dkk., (2004). Dalam penelitian ini digunakan etilen glikol, sedangkan Murwani dkk menggunakan etanol. Penggantian pelarut dari etanol menjadi etilen glikol bertujuan agar ukuran pori menjadi seragam seperti penelitian yang dilaporkan oleh A'yuni (2015). Proses pelarutan $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dalam *gelating agent* terjadi reaksi alkoholisis membentuk senyawa alkoksida logam [5] [6].

Selanjutnya dilakukan penambahan HF sambil diaduk. Penambahan HF menyebabkan larutan menjadi keruh yang merupakan indikasi bahwa tahap ini mulai terbentuk sol. Dalam tahap ini terjadi reaksi fluorolisis yaitu reaksi antara alkoksida logam dengan HF.

Proses selanjutnya adalah pemeraman terbentuk gel stabil. Hasil menunjukkan bahwa terdapat dua fasa yaitu fasa atas pelarut dan fasa bawah gel. Kemudian dilakukan proses pemisahan gel dengan pelarutnya. Setelah dipisahkan dari

pelarut, gel dicuci dengan aquades. Selanjutnya dikeringkan dan dikalsinasi pada suhu 400°C. Hasil yang diperoleh berupa serbuk padatan dengan warna putih. Proses kalsinasi dilakukan agar terjadi dekomposisi jaringan pada *xerogel* sehingga dapat membentuk padatan target.

Berikut merupakan reaksi keseluruhan yang terjadi pada pembentukan katalis MgF₂



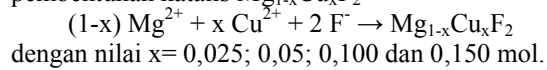
Gambar 1 Difraktogram MgF₂

Padatan hasil kalsinasi kemudian dikarakterisasi struktur kristalnya dengan *X-ray Diffraction* (XRD). Hasil karakterisasi berupa difraktogram dapat dilihat pada Gambar 4.2. Difraktogram data XRD yang diperoleh dicocokkan dengan standar dari *database JCPDS-Internasional Centre of diffraction* tahun 2001 dengan program PCPDFWIN. Difraktogram padatan dicocokkan dengan database MgF₂ (PDF 70-2269) sebagai acuan terbentuknya MgF₂. Pada difraktogram padatan terlihat puncak khas pada 2θ 27,22° ; 40,43° dan 53,48° yang juga terlihat pada database standar. Hal ini menunjukkan bahwa padatan merupakan katalis MgF₂ dengan struktur tetragonal. Selain itu difraktogram MgF₂ juga dicocokkan dengan database prekursor yaitu Mg(NO₃)₃·6H₂O (PDF 77-217) dan MgO yang mungkin terbentuk selama proses sintesis. Hasil difraktogram tidak menunjukkan adanya fasa lain karena tidak muncul puncak dari Mg(NO₃)₃·6H₂O maupun MgO sehingga hasil sintesis MgF₂ merupakan fasa tunggal.

B. Padatan Mg_{1-x}Cu_xF₂

Pada penelitian ini dilakukan sintesis katalis doping Mg_{1-x}Cu_xF₂. Menurut Li (2005) doping dapat mempengaruhi keasaman dari katalis [7]. Sintesis yang dilakukan sama seperti sintesis MgF₂ hanya saja ditambahkan Cu sebagai logam doping. Semakin banyak logam Cu yang ditambahkan warna biru semakin pekat. Pada tahap ini pembentukan senyawa alkoksida logam seperti yang terjadi pada MgF₂ hanya saja sebagian molekul Mg digantikan oleh Cu. Kemudian dilakukan penambahan HF menyebabkan larutan menjadi berwarna biru keruh yang merupakan indikasi terbentuknya sol. Reaksi fluorolisis yang terjadi sama halnya yang terjadi pada sintesis MgF₂.

Perlakuan selanjutnya seperti pada sintesis MgF₂. Berikut merupakan reaksi keseluruhan yang terjadi pada pembentukan katalis Mg_{1-x}Cu_xF₂

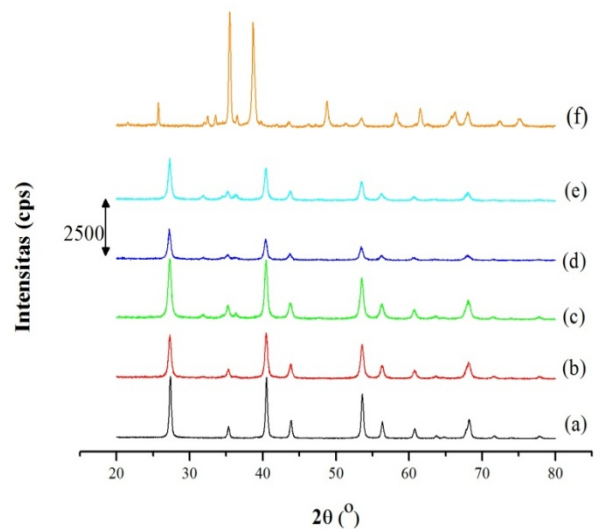


Pengamatan secara visual sebelum dan sesudah dilakukan kalsinasi dapat dilihat pada Gambar 2 yang menunjukkan adanya perbedaan warna dari berwarna putih (sebelum kalsinasi) dan berwarna coklat kehitaman (sesudah kalsinasi). Semakin besar variasi doping logam yang dimasukkan, maka intensitas warna kehitaman pada padatan semakin kuat.



Gambar 2 Padatan katalis sebelum dan sesudah kalsinasi pada variasi *doping* logam: (a) 0,025 mol Cu, (b) 0,05 mol Cu, (c) 0,100 mol Cu dan (d) 0,150 mol Cu

Padatan hasil kalsinasi kemudian dikarakterisasi strukturnya dengan *X-ray Diffraction* (XRD). Difraktogram Mg_{1-x}Cu_xF₂ (x = 0,025 ; 0,050 ; 0,100 ; 0,150) dicocokkan dengan database MgF₂ (PDF 70-2269). Seluruh hasil difraktogram padatan dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3 Difraktogram katalis : (a) MgF₂, (b) Mg_{0,975}Cu_{0,025}F₂, (c) Mg_{0,950}Cu_{0,050}F₂, (d) Mg_{0,900}Cu_{0,100}F₂, (e) Mg_{0,850}Cu_{0,150}F₂, (f) CuO

Pada Gambar 4.3, masing-masing difraktogram dari $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x = 0,025 ; 0,050 ; 0,100 ; 0,150$) menunjukkan puncak sama dengan MgF_2 yaitu pada 2θ 27,22° ; 40,43° dan 53,48°. Hal tersebut dapat disimpulkan bahwa hasil sintesis katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x = 0,025 ; 0,050 ; 0,100 ; 0,150$) mempunyai struktur kristal utama yaitu MgF_2 dengan bentuk tetragonal.

Selain itu, seluruh difraktogram juga dicocokkan dengan puncak MgO dari prekursor $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dan CuO dari logam dopant yang bertujuan untuk mengetahui adanya puncak lain selain puncak MgF_2 . Puncak MgO sesuai dengan standar PDF 77-217 tidak ditemukan dalam masing-masing difraktogram $Mg_{1-x}Cu_xF_2$. Puncak CuO dicocokkan dengan standar PDF 80-1916 tidak ditemukan dalam masing-masing difraktogram $Mg_{1-x}Cu_xF_2$. Pada difraktogram $Mg_{0,85}Cu_{0,15}F_2$ tidak terlihat perbedaan intensitas antara MgF_2 dengan puncak CuO tertinggi karena posisinya berhimpitan. Hal ini diperkuat dengan tidak adanya puncak khas CuO lain yang terlihat pada difraktogram $Mg_{0,85}Cu_{0,15}F_2$. Dapat disimpulkan katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ hanya memiliki fasa MgF_2 .

Hasil pencocokkan katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x = 0,025 ; 0,050 ; 0,100 ; 0,150$) dengan MgF_2 menunjukkan adanya pergeseran nilai 2θ [8] yang ditampilkan pada Tabel 4.1. Hal tersebut merupakan indikasi bahwa doping logam Cu telah dilakukan pada katalis MgF_2 .

Tabel 1 Nilai pergeseran 2θ Katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ pada XRD

| Nilai x pada katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ | 2θ (°) | | | |
|--|---------------|-------|-------|-------|
| 0 | 27,22 | 40,43 | 53,48 | 68,08 |
| 0,025 | 27,19 | 40,48 | 53,52 | 68,04 |
| 0,050 | 27,34 | 40,40 | 53,42 | 68,20 |
| 0,100 | 27,20 | 40,48 | 53,53 | 68,13 |
| 0,150 | 27,24 | 40,41 | 53,56 | 68,24 |

IV. KESIMPULAN

Katalis $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x = 0 ; 0,025 ; 0,05 ; 0,1$ dan $0,15$) telah berhasil disintesis dengan metode sol-gel. Data difraktogram menunjukkan bahwa padatan katalis hasil sintesis sesuai dengan No. 70-2269 dengan struktur tetragonal. Difraktogram padatan $Mg_{1-x}Cu_xF_2$ ($x = 0,025 ; 0,05 ; 0,075 ; 0,1$ dan $0,15$) telah memunculkan puncak untuk MgF_2 dan menunjukkan adanya pengaruh *doping* logam Cu terhadap pergeseran 2θ puncak.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih yang sebesar-besarnya disampaikan kepada tim penelitian katalis, Laboratorium Kimia Material dan Energi dan Jurusan Kimia FMIPA ITS, serta semua pihak yang turut membantu.

DAFTAR PUSTAKA

[1] A'yuni Q. "Sintesis Katalis MgF_2 Metode Sol-Gel dengan *Gelating Agent* Etanol dan Etilen Glikol serta Kinerjanya pada Reaksi Asetilasi Gliserol". Kimia. ITS. 2015.

[2] Leofanti G., Tozzola G., Padovan M., Petrini G., Bordiga S. dan Zecchina A. "Catalyst Characterization: Applications". *Catalysis Today*. 34, 329–352.1997.

[3] C. Perego and P. Villa, "Catalyst preparation methods," *Catalysis Today*, vol. 34, no. 3–4, pp. 281–305, Feb. 1997.

[4] I. K. Murwani, E. Kemnitz, T. Skapin, M. Nickkho-Amiry, and J. M. Winfield, "Mechanistic investigation of the hydrodechlorination of 1,1,1,2-tetrafluorodichloroethane on metal fluoride-supported Pt and Pd," *Catalysis Today*, vol. 88, no. 3–4, pp. 153–168, Feb. 2004.

[5] Rüdiger, S., Groß, U., Kemnitz, E., "Non-Aqueous Sol-Gel Synthesis of Nano-Structured Metal Fluorides", *Journal of Fluorine Chemistry*, Vol. 128, hal. 353–368. 2007.

[6] C. H. Su, C. R. Lin, C. H. Hung, C. Y. Chang, and L. Stobinski, "Novel process to synthesize the well-size-controlled carbon nanotubes using Fe/TiO as catalyst by sol-gel method," *Surface and Coatings Technology*, vol. 200, no. 10, pp. 3211–3214, Feb. 2006.

[7] Li, Z. "Novel Solid Base Catalysts for Michael Additions; Synthesis, Characterization and Application", Disertasi, Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I. Humboldt-Universität zu Berlin. Berlin. 2005.

[8] Zhi G., Song J., Mei B. and Zhou W., "Synthesis and characterization of Er^{3+} doped CaF nanoparticles", *Journal of Alloys and Compounds*. 509. 9133–9137. 2011.