

PENGARUH KOMPOSISI *PSEUDOBROOKITE* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ TERHADAP PERUBAHAN FASA DAN PARAMETER STRUKTUR KRISTALNYA

Yosef Sarwanto dan Wisnu Ari Adi

Pusat Sains dan Teknologi Bahan Maju (PSTBM) – BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang -15314

ABSTRAK

PENGARUH KOMPOSISI *PSEUDOBROOKITE* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ TERHADAP PERUBAHAN FASA DAN PARAMETER STRUKTUR KRISTALNYA. Telah dilakukan sintesis dan karakterisasi pseudobrookite $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan metode reaksi padatan menggunakan mechanical milling. Serbuk Fe_2O_3 dicampur dengan serbuk TiO_2 dengan variasi komposisi $x = 0; 0,3; 0,5; \text{ dan } 1$ yang masing-masing komposisi ditambahkan 50 ml etanol kemudian dimilling selama 5 jam, selanjutnya dipanaskan pada suhu $1000\text{ }^\circ\text{C}$ selama 5 jam. Fasa-fasa yang terbentuk pada sampel $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ diukur dengan menggunakan Difraktometer Sinar-X (XRD), kemudian diidentifikasi menggunakan program Match dan struktur kristal menggunakan program General Structure Analysis System (GSAS). Hasil refinement menunjukkan bahwa untuk sampel dengan komposisi $x = 0$ merupakan fasa tunggal Fe_2TiO_5 , sedangkan untuk komposisi $x > 0$ sampel memiliki dua fasa yaitu fasa pseudobrookite Fe_2TiO_5 dan TiO_2 rutil. Analisis komposisi fraksi massa dari masing-masing sampel dibahas pada makalah ini.

Katakunci: $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$, Reaksi padatan, Struktur kristal, Fraksi massa

ABSTRACT

EFFECT OF *PSEUDOBROOKITE* $Fe_{2+x}Ti_{1+x}O_5$ COMPOSITION ON THE CHANGES IN PHASE AND PARAMETER OF CRYSTAL STRUCTURE. Synthesis and characterization of pseudobrookite $Fe_{2+x}Ti_{1+x}O_5$ with solid state reaction method using a mechanical milling have been performed. Fe_2O_3 powder was mixed with TiO_2 powder at various composition $x = 0; 0.3; 0.5; \text{ and } 1$, which each composition was added 50 ml ethanol and then milled for 5 hours, after that heated at $1000\text{ }^\circ\text{C}$ for 5 hours. The phases $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ were measured using X-ray diffraction (XRD), and then identified using Match program. The crystal structure analysis was carried out by using the program of General Structure Analysis System (GSAS). Refinement results show that for the composition $x = 0$, the sample is single phase of Fe_2TiO_5 , while $x > 0$ sample has two phases, namely pseudobrookite Fe_2TiO_5 and rutile TiO_2 . Mass fraction analysis of each sample is discussed in this paper.

Keywords: $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$, Solid state reaction, Crystal structure, Mass fraction

1. PENDAHULUAN

Besi-titanat ($Fe_xTi_yO_z$) pada umumnya dikenal dalam 3 jenis, yaitu *ilmenite* ($FeTiO_3$), *pseudobrookite* (Fe_2TiO_5) dan *ulvospinel* (Fe_2TiO_4) [1]. Untuk jenis *Pseudobrookite* Fe_2TiO_5 yang mempunyai struktur ortorombik dengan *space group* ($Cmcm$) pada umumnya dapat disintesis melalui reaksi *solid-state* dan metode *sol-gel* [2]. *Pseudobrookite* Fe_2TiO_5 juga menunjukkan fenomena yang sangat menarik pada

kondisi *anisotropic-uniaxial-spin-glass* di suhu rendah yaitu sekitar 53 K [3] dan bersifat paramagnetik pada suhu kamar. *Pseudobrookite* Fe_2TiO_5 dapat digunakan untuk beberapa aplikasi seperti sebagai bahan mikroelektronik, sensor gas, *non-linear optics*, aplikasi magnetik, [4] *filter optics*, fotokatalis [5], foto elektroda, anoda baterai, pigmen [6], dan sebagai membran pada suhu tinggi untuk aplikasi *fuel cell* [7]. Dengan demikian aplikasi dari bahan *Pseudobrookite* Fe_2TiO_5 ini sangat luas dan menjadikan bahan ini

merupakan salah satu bahan multi fungsional sehingga untuk pemahaman lebih lanjut mengenai bahan ini menjadi sangat menarik untuk diteliti.

Beberapa metode telah banyak dikembangkan para peneliti untuk mensintesis senyawa besi-titanat ($\text{Fe}_x\text{Ti}_y\text{O}_z$) yang menggunakan bahan baku Fe_2O_3 dan TiO_2 diantaranya adalah dengan menggunakan metode *wet impregnation*, *hydrolysis freezing*, *hydrothermal*, *co-precipitation*, *sol-gel processes*, *ultrasound irradiation*, dan *chemical vapor deposition* [8]. Namun demikian salah satu metode lain yang paling umum adalah menggunakan metode reaksi padatan [9].

Pada penelitian ini akan dilakukan studi pendahuluan untuk mensintesis bahan *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 menggunakan reaksi padatan dengan menggunakan proses *mechanical milling* secara basah. Pada tahap awal dilakukan modifikasi komposisi antara jumlah kandungan besi (Fe) dan titanium (Ti) untuk mendapatkan fasa tunggal dari *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 . Kemudian berdasarkan hasil karakterisasi fasa menggunakan difraktometer sinar-X (XRD) akan diperoleh hasil pembentukan fasa Fe_2TiO_5 sebagai fungsi komposisi. Tujuan penelitian ini adalah untuk mensintesis dan mengkarakterisasi bahan magnet *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 dari bahan baku Fe_2O_3 dan TiO_2 . Sedangkan pembahasan pada studi pendahuluan ini difokuskan pada tinjauan analisis struktur kristal, parameter struktur dan fraksi massa pada bahan *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 yang dihasilkan.

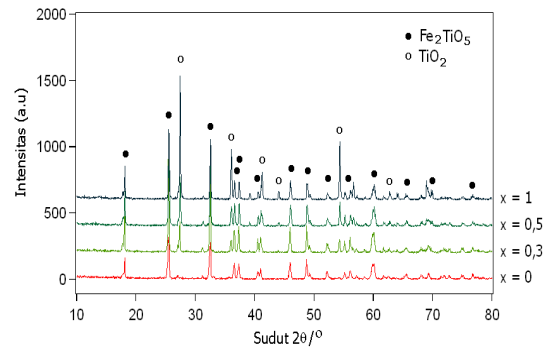
2. TATA KERJA (BAHAN DAN METODE)

Sintesis bahan magnet *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dilakukan menggunakan metode reaksi padatan dengan bahan baku $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (Merck) dan TiO_2 (Aldrich) kemurnian pro analisis (99,9%) dan sesuai komposisi stoikiometri seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Perhitungan komposisi stoikiometri *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$.

Bahan baku	Komposisi			
	x = 0 (gram)	x = 0,3 (gram)	x = 0,5 (gram)	x = 1 (gram)
$\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$	6,665	5,722	5,083	3,293
TiO_2	3,334	4,378	5,086	3,295

Kedua bahan tersebut dicampur menggunakan *high energy milling* selama 10 jam dengan spesifikasi kecepatan normal 1400 rpm. Campuran hasil proses *milling* kemudian dibuat sampel pelet dengan tekanan kompaksi 5000 *psi*



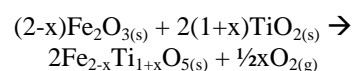
Gambar 1. Pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dengan komposisi (x = 0; 0,3; 0,5; dan 1).

kemudian sampel disintering pada suhu 1000 °C selama 5 jam dan didinginkan di dalam *furnace*.

Analisis kualitas dan kuantitas fasa-fasa yang ada di dalam sampel diukur menggunakan alat *X-ray diffractometer (XRD) Shimadzu* tipe XD610. Pengukuran pola difraksi sampel dilakukan dengan berkas sinar-X dari *tube anode Cu (copper)* dengan panjang gelombang, $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, *mode: continuous-scan, step size: 0,05°*, dan *time per step: 0,5 detik*. Profil difraksi sinar-X dianalisis menggunakan perangkat lunak GSAS (*General Structure Analysis System*).

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pseudobrookite $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ yang disintesis melalui metode reaksi padatan menggunakan *mechanical milling* dengan bahan baku $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, TiO_2 (*anatase*) dan *ethanol*, dengan mengikuti persamaan reaksi :



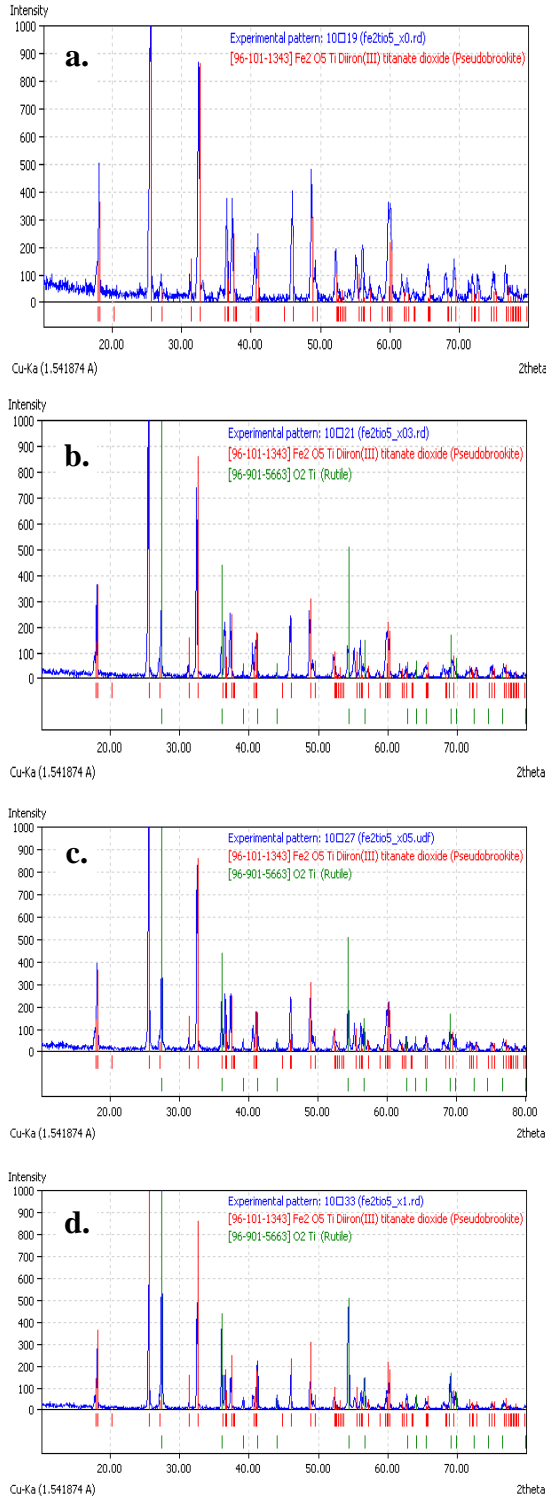
Pada Gambar 1 ditunjukkan hasil pengukuran pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dengan variasi komposisi (x = 0; 0,3; 0,5; dan 1).

Pada Gambar 1 tampak bahwa reaksi sempurna membentuk fasa tunggal *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 dengan komposisi x = 0, sedangkan untuk x > 0, sampel tidak dapat bereaksi dengan sempurna sehingga tidak lagi membentuk fasa tunggal namun sampel terdiri dari dua fasa yaitu fasa *pseudobrookite* Fe_2TiO_5 dan fasa *rutile* TiO_2 . Kondisi ini sangat menarik untuk dipahami bahwa berdasarkan hasil identifikasi fasa pada Gambar 1 menunjukkan terjadinya ketidaksetimbangan reaksi pada saat jumlah kandungan Fe diturunkan sementara kandungan Ti ditambahkan. Dengan demikian diperlukan analisa lebih lanjut untuk

PENGARUH KOMPOSISI *PSEUDOBROOKITE* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ TERHADAP PERUBAHAN FASA DAN PARAMETER STRUKTUR KRISTALNYA

dapat menunjukkan bahwa sampel-sampel tersebut pada $x = 0$ adalah fasa tunggal, sementara untuk $x > 0$ memiliki dua fasa.

Identifikasi fasa pada Gambar 1 ditentukan dengan menggunakan program *Match* seperti yang diperlihatkan pada Gambar 2.



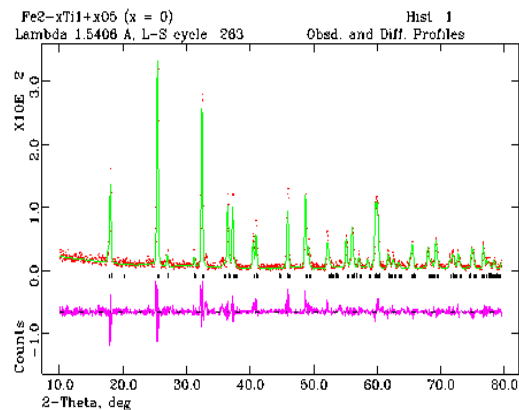
Gambar 2. Identifikasi fasa dari pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan variasi komposisi ($x =$ (a) 0, (b) 0,3, (c) 0,5 dan (d) 1.

Identifikasi fasa ini dilakukan dengan cara mencocokkan data hasil pengukuran difraksi sinar-X dengan database dari program *Match* sehingga didapatkan atau sesuai dengan no kartu 96-101-1343 yaitu Fe_2TiO_5 (*Diron(III) titanate dioxide pseudobrookite*) untuk komposisi $x = 0$. Sedangkan untuk komposisi $x = 0,3; 0,5$ dan 1 yang masing-masing sesuai dengan no kartu 96-101-1343 (*Diron(III) titanate dioxide pseudobrookite*) dan no 96-901-5663 TiO_2 (*rutile*). Dengan demikian untuk variasi komposisi $x = 0$ adalah satu fasa sedangkan untuk $x = 0,3; 0,6$ dan 1 masih terdiri dari dua fasa. Hal ini juga diperkuat dengan hasil penelitian Priyo dkk [10] dimana hasil identifikasi fasa yang muncul pada sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan variasi komposisi ($x = 0; 0,3; 0,5; \text{ dan } 1$) yang diduga adalah fasa Fe_2TiO_5 dan TiO_2 .

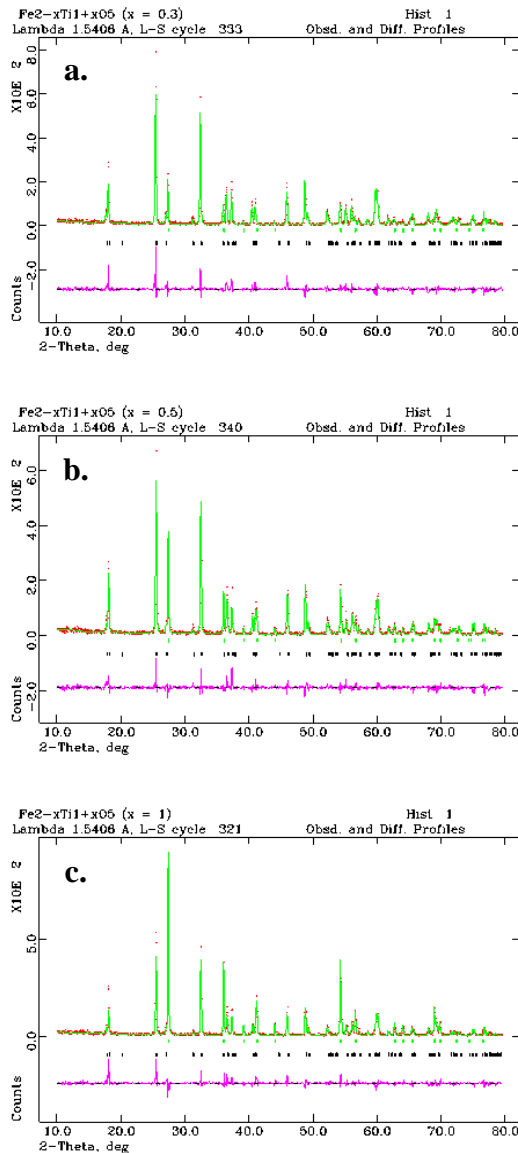
Pada Gambar 3 diperlihatkan hasil *refinement* dengan menggunakan program GSAS (*General Structure Analysis System*) untuk pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan komposisi ($x = 0$).

Gambar 3 menunjukkan bahwa hasil analisis struktur kristal berupa hasil *refinement fitting* dari pola difraksi sinar-X untuk sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan komposisi ($x = 0$) merupakan fasa tunggal Fe_2TiO_5 yang mempunyai *space group* Cmc $m(63)$, dan sistem kristal orthorombik dengan parameter kisi $a = 3,7188(4) \text{ \AA}$, $b = 9,756(1) \text{ \AA}$ dan $c = 9,946(1) \text{ \AA}$, sudut kristal $\alpha = \beta = 90^\circ$ dan $\gamma = 120^\circ$, volume unit sel $V = 360,91(9) \text{ \AA}^3$ dan kerapatan atomik $\rho = 4,409 \text{ gr.cm}^{-3}$. Sedangkan untuk faktor R didapat sebesar $wRp = 29,22$ dan $Rp = 21,62$ demikian pula untuk nilai *goodness of fit* (S) X^2 (*chi-squared*) didapatkan sebesar 1,356.

Pada Gambar 4 diperlihatkan hasil analisis struktur kristal berupa hasil *refinement fitting* dari pola difraksi sinar-X untuk sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan komposisi ($x = 0,3; 0,5$ dan 1). Pada Gambar 4 tersebut juga ditunjukkan bahwa



Gambar 3. *Refinement* pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $Fe_{2-x}Ti_{1+x}O_5$ dengan komposisi ($x = 0$).



Gambar 4. Refinement pola difraksi sinar-X sampel pseudobrookite $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dengan komposisi $x =$ (a) 0,3, (b) 0,5 dan (c) 1.

telah terbentuk puncak-puncak difraksi *bragg* yang terdiri dari dua fasa, yaitu fasa-fasa Fe_2TiO_5 dan TiO_2 (*rutile*).

Rangkuman detail dari hasil *refinement* pola difraksi sinar-X sampel *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dengan komposisi ($x = 0; 0,3; 0,5$ dan 1) baik faktor R yang merupakan *criteria of fit*, faktor χ^2 adalah *goodness of fit*, parameter struktur dan perubahan fasa untuk keseluruhan sampel ditunjukkan seperti pada Tabel 2.

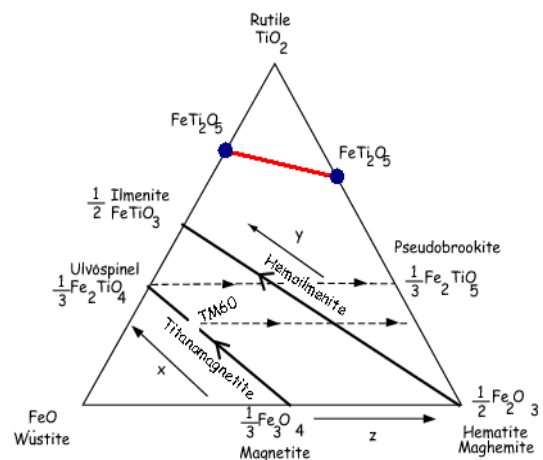
Pada Tabel 2 diperlihatkan bahwa parameter kisi baik untuk fasa Fe_2TiO_5 maupun fasa TiO_2 tampak relatif sama pada semua komposisi sampel. Hal ini menunjukkan bahwa tidak terjadi ekspansi volume unit sel yang berarti tingkat kristalisasi

bahan masing-masing fasa relatif sama. Namun pada sampel $x > 0$ tampak bahwa fraksi fasa TiO_2 semakin meningkat seiring dengan menurunnya fasa Fe_2TiO_5 . Pertambahan jumlah fraksi dari fasa TiO_2 ini sangat bergantung terhadap jumlah kandungan Fe yang diberikan dan membentuk fasa Fe_2TiO_5 . Jadi berdasarkan diagram fasa seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5 bahwa komposisi stoikiometri dari pembentukan fasa Fe_2TiO_5 ini dapat diperoleh dengan mencampurkan Fe_2O_3 sebesar 66,67 % berat dengan TiO_2 sebesar 33,33 % berat sehingga melalui proses pemanasan akan bertransformasi fasa menjadi *pseudobrookite* dimana besi (Fe) akan mengikat ion-ion titanium (Ti).

Tabel 2. Nilai parameter struktur, *Criteria* (factor R), *goodness of fit* (χ^2) dan perubahan fasa sampel *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ dengan komposisi ($x = 0; 0,3; 0,5$ dan 1).

Komposisi	Fasa	a	b	c	χ^2	wRp	(%) berat
0	Fe_2TiO_5	3.7188(4)	9.7569(1)	9.9466(1)	1.356	29.22	100,00
0,3	Fe_2TiO_5	3.7160(2)	9.7586(7)	9.9446(6)	1.374	26.91	78,31
	TiO_2	4.5928(9)	4.5928(9)	2.9580(6)			21,69
0,5	Fe_2TiO_5	3.7148(2)	9.7550(7)	9.9428(8)	1.358	25.70	62,92
	TiO_2	4.5910(6)	4.5910(6)	2.9569(4)			37,08
1	Fe_2TiO_5	3.7157(3)	9.7587(9)	9.9443(8)	1.383	26.69	37,88
	TiO_2	4.5928(3)	4.5928(3)	2.9580(2)			62,12

Berdasarkan kurva diagram fasa maka dengan adanya penambahan TiO_2 selanjutnya dan berkurangnya Fe_2O_3 sesuai dengan prinsip stoikiometri, garis kurva pada diagram fasa akan bergeser ke bawah yang artinya bahwa fasa dari *pseudobrookite* tetap terbentuk namun masih menyisakan sejumlah TiO_2 sebesar selisih dari jumlah Ti yang terikat dalam ion-ion Fe yang diharapkan dapat bereaksi dengan Fe_2O_3 dan membentuk fasa Fe_2TiO_5 .



Gambar 5. Diagram fasa pseudobrookite $\text{Fe}_2\text{O}_3 - \text{TiO}_2 - \text{FeO}$ [10].

4. KESIMPULAN

Sintesis dan karakterisasi bahan magnet *pseudobrookite* $\text{Fe}_{2-x}\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$ beserta pengaruh komposisinya terhadap perubahan fasa serta parameter struktur kristal telah dilakukan. Parameter kisi baik untuk fasa Fe_2TiO_5 maupun fasa TiO_2 tampak relatif sama pada semua komposisi sampel yang berarti bahwa tidak terjadi ekspansi volume unit sel dan tingkat kristalisasi bahan masing-masing fasa relatif sama. Pada sampel dengan komposisi $x = 0$ adalah merupakan fasa tunggal, sedangkan pada sampel dengan komposisi $x > 0$ terdiri dari dua fasa yaitu fasa Fe_2TiO_5 dan fasa TiO_2 , namun pada komposisi sampel $x > 0$ memperlihatkan bahwa fraksi fasa TiO_2 semakin meningkat seiring dengan menurunnya fasa Fe_2TiO_5 .

5. UCAPAN TERIMAKASIH

Penelitian ini didanai dari anggaran DIPA PSTBM-BATAN tahun 2015 “Pengembangan Sains Bahan Maju Smart Magnetik dari Bahan Baku Lokal dengan Teknologi Nuklir untuk Mendukung Industri Nasional”. Pada kesempatan ini penulis mengucapkan terimakasih kepada Bpk. Bambang Sugeng dan Bpk Imam Wahyono yang telah banyak membantu dalam karakterisasi menggunakan difraktometer sinar-X.

6. DAFTAR PUSTAKA

1. ENHESSARI, M., RAZI, M.K., ETEMAD, L., PARVIZ, A. and SAKHAEI, M., *Journal of Experimental Nanoscience*, 9 (2) (2014) 167-176
2. MIN, K-M., PARK, K-S., LIM, A-H., KIM, J-C. and KIM, D-W., *Ceramics International*, 38 (2012) 6009–6013
3. JIN, L. and ZHOU, C., *Progress in Natural Science: Materials International*, 23 (4) (2013) 413–419
4. ALJURAIDE, N.I., MOUSA, M.A.A., HESSIEN, M., QHATANI, M. and ASHOUR, A., *Int. J. Nanoparticles*, 4 (1) (2011)
5. KHOSRAVI, E., RAZI, M.K., and ENHESSARI, M., *Int. J. Bio-Inorg. Hybd. Nanomat.*, 1 (2) (2012) 115-122
6. CHOUDHURY, B. and CHOUDHURY, A., *International Nano Letters* (2013)
7. HOUSHYARI, K., JAVANBAKHT, M., NAJI, L. and ENHESSARI, M., *Physical and Electrochemical Study of Nafion/ Fe_2TiO_5 Nanocomposite Membranes for High Temperature PEM Fuel Cells.*, (Proceedings of the 4th International Conference on

- Nanostructures (ICNS4) 12-14 March, 2012, Kish Island, I.R. Iran), Iran (2012)
8. EHSAN, M.A., TAHIR, A.A., HAMID, M., MAZHAR, M., UPUL, W.K.G. and ZELLER, M., *Inorganica Chimica Acta* 376 (2011) 189–194
9. XIAO, W., LU, X-G., ZOU, X-L., WEI, X-M., and DING, W-Z., *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* 23 (2013) 2439–2445
10. PRIJO, S., WISNU, A.A. and SUDIRMAN, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 14 (3) (2013) 209 – 213