

Integrasi Penginderaan Jauh dan Sistem Informasi Geografis untuk Evaluasi Penyimpangan Penggunaan Lahan Kota Terhadap Rencana Detail Tata Ruang Kota  
*Oleh: Agus Suryantoro* ..... 97-118

Pengaruh Sika Viscocrete-5 Terhadap Sifat Beton Segar dan Kuat Tekan Self-Compacting Concrete  
*Oleh: Slamet Widodo* ..... 119-134

Biodata Penulis ..... 135-142

$Ti_8O_{12}(H_2O)_2[Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O]$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Sutrisno)

**$Ti_8O_{12}(H_2O)_2[Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O]$  SEBAGAI SUMBER TITANIUM UNTUK PREPARASI ZEOLIT TITANIUM SILIKAT (TS-1)**

Oleh:

Hari Sutrisno

Staf Pengajar FMIPA UNY

**Abstract**

Titanium silicate of MFI type (TS-1) has been synthesised by using tetrapropyl ammonium hydroxide (TPAOH) as organic template, tetraethyl orthosilicate (TEOS) and  $Ti_8O_{12} \cdot (H_2O)_2 \cdot [Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O]$  as silicon and titanium source respectively by hydrothermal method. The zeolites have been characterised by using various well-known techniques such as X-Ray Diffraction (XRD) with WinPlot Program, Scanning Electron Microscopy (SEM) with Electron Diffraction (ED), IR and Raman spectroscopy. The zeolite of TS-1 crystallises in the orthorhombic system, space group  $Pnma$ , with  $a = 20.044 \text{ \AA}$ ,  $b = 19.929 \text{ \AA}$ ,  $c = 13.400 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . It has been changed by calcination (TS-1C) in the monoklinik system, space group  $P2_1/n.1.1$ , with  $a = 20.068 \text{ \AA}$ ,  $b = 19.897 \text{ \AA}$ ,  $c = 13.389 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = 90,024^\circ$ ,  $\beta = \gamma = 90^\circ$ .

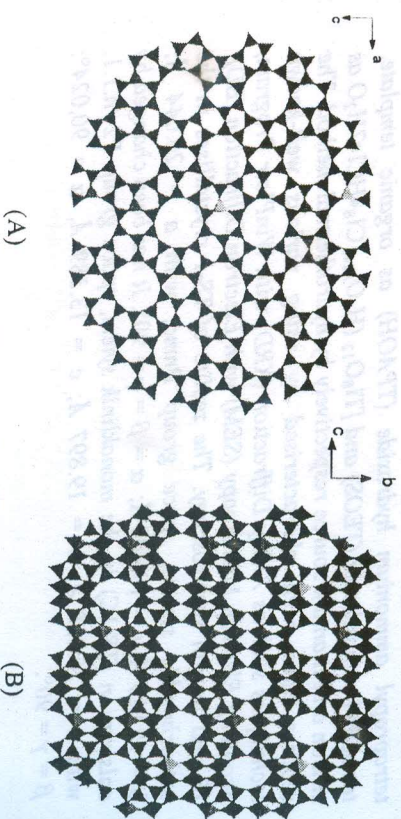
**Keywords:** Hydrothermal, TS-1, Titanium Silicate, Zeolite

**PENDAHULUAN**

Penggantian  $Si^{4+}$  dengan  $Ti^{4+}$  dalam kerangka silikat-1 (S-1) pertama kali dilaporkan oleh group Enichem (Taramasso et.al., 1983). TS-1 merupakan salah satu zeolit yang tergolong dalam tipe MFI (Mobil Five). Struktur zeolit tipe MFI terdiri dari 2 jenis lorong yaitu lurus dan sinusoidal elip yang dimensinya dikontrol oleh 10 rangka dari atom oksigen. Lorong lurus



berdimensi  $0,54 \times 0,56 \text{ nm}^2$  paralel dengan aksis-b [010] (Gambar 1A) dan terhubung dengan lorong sinusoidal elip berdimensi  $0,51 \times 0,55 \text{ nm}^2$  paralel aksis-a [100] (Gambar 1B) membentuk sistem 3 dimensi. Sistem kristal zeolit tipe MFI dapat dijumpai dalam 3 jenis yaitu monoklinik,  $P2_1/n.1.1$ ; ortorombik,  $Pnma$  dan ortorombik,  $P2_12_12_1$ .

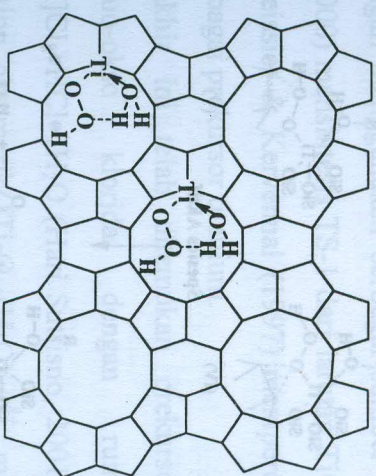


Gambar 1. Struktur zeolit tipe MFI : (A) paralel aksis-b [010] dan (B) paralel aksis-a [100]

Titanium silikat (TS-1) merupakan salah satu contoh zeolit dengan struktur MFI dan berfungsi sebagai katalis redoks dari berbagai reaksi oksidasi dalam phase cair pada suhu rendah dengan bantuan  $\text{H}_2\text{O}_2$  (oksidan). Senyawa  $\text{H}_2\text{O}_2$  terikat dengan titanium yang ada di lorong-lorong membentuk spesies aktif, seperti terlihat pada Gambar 2. Spesies aktif ini yang berperan aktif bereaksi

$[\text{Ti}_8\text{O}_{12}(\text{H}_2\text{O})_{24}]\text{Cl}_8 \cdot \text{HCl} \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Sutrisno)

secara redoks dengan senyawa organik. Beberapa reaksi redoks yang berhasil dipercepat reaksinya dengan katalis ini antara lain: hidrokilasi aromatik (Tuel et.al., 1991; Taramasso & Neri, 1983), oksidasi alkana (Wang & Guo, 1999), oksidasi alkena (Tatsumi et al., 1990), oksidasi thioeter (Hulea, Moreau & Di Renzo, 1996), epoksidasi alkena (Clerici & Ingalina, 1998) dan oksidasi sulfoksida (Moreau et al., 1997).

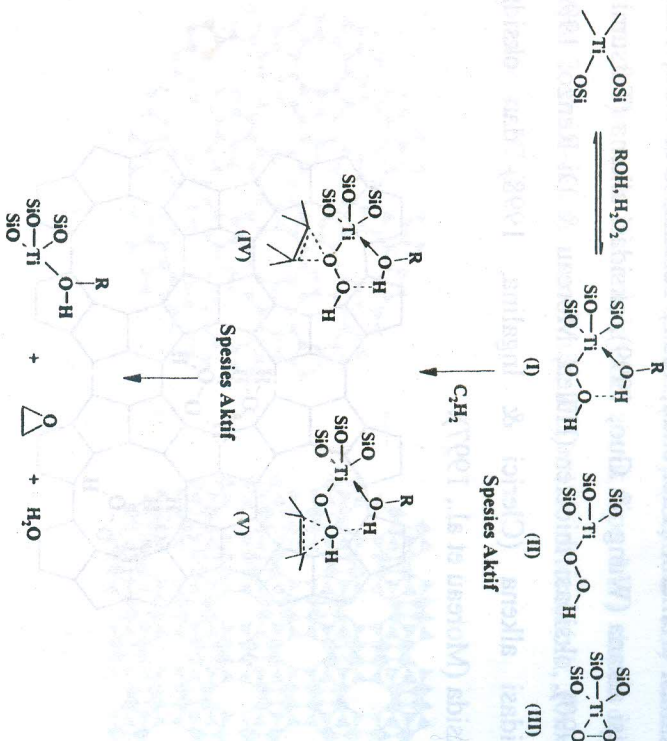


Gambar 2. Salah satu Spesies aktif yang ada pada zeolit TS-1

Mekanisme reaksi oksidasi melibatkan beberapa senyawa atau spesies aktif yaitu spesies aktif yang berasal dari perpaduan dari zeolit TS-1 dengan  $\text{H}_2\text{O}_2$  dan zeolit TS-1,  $\text{H}_2\text{O}_2$  dengan senyawa organik yang akan dioksidasi. Gambar 3 berikut ini merupakan contoh terbentuknya spesies aktif yang terjadi pada



mekanisme epoksidasi alkena (Arends, Sheldon, Wallau & Schuchardt, 1997).



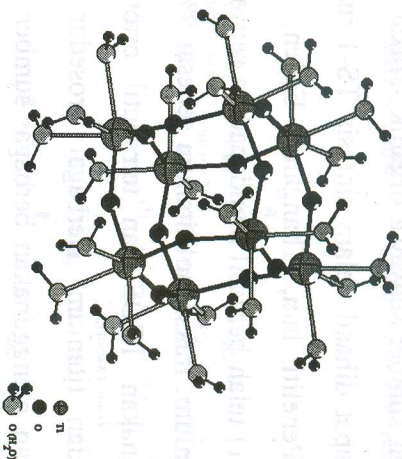
Gambar 3. Mekanisme Epoksidasi Alkena oleh Katalis TS-1

Taramasso, Perego & Notari (1983) pertamakali berhasil mensintesis TS-1 melalui 2 cara yaitu pertama, dari tetraetil ortosilikat (TEOS) dan kedua, sol silika (larutan koloid Ludox) sebagai sumber silika, sumber titanium berasal dari senyawa tetraetil ortotitanat (TEOT) dan tetrapropil amonium hidroksi

(TPAOH) sebagai sumber senyawa organik. Fraksi mol maksimal titanium yang dapat dihasilkan dalam sintesis TS-1 ini adalah 2,5% (Si/Ti = 39). Peneliti lain, Thangaraj, Eapen, Sivasanker & Ratnasamy (1991) telah berhasil mendapatkan senyawa TS-1 yang kaya dengan titanium, fraksi mol titanium sebesar 9% (Si/Ti = 20), dengan menggunakan TEOS dan tetrapropil ortotitanat sebagai sumber silika dan titanium. Berbagai prosedur sintesis telah dilaporkan dengan menggunakan berbagai sumber titanium. Gao, Lu & Chen (2000) mensintesis TS-1 dari larutan  $TiCl_3$ , sedangkan Jorda, Tuell, Teissier & Kervennal (1997) memperoleh TS-1 dari larutan  $TiF_4$  sebagai prekursor titanium.

Akhir-akhir ini telah ditemukan prekursor baru yaitu titanium aquo-okso klorida dengan rumus struktur  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$  (Hari Sutrisno, 2001). Senyawa ini terdiri dari kation oktametik  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]^{8+}$ , molekul air dan anion klorida. Struktur kation oktametik berupa kluster dengan simetri pseudo kubik yang tersusun dari 8 oktahedral  $TiO_3(H_2O)_3$  yang terhubung oleh anion okso (Gambar 4). Struktur kluster oktametik ini mirip dengan struktur perovskite tipe  $ReO_3$ .





Gambar 4. Struktur Oktamer  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]^{8+}$

Berdasarkan hal di atas terdorong untuk menggantikan  $Si^{4+}$  dengan ion  $Ti^{4+}$  dari prekursor titanium  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$ . Metode yang akan digunakan pada penelitian ini merupakan suatu metode yang dikembangkan oleh group Jean Rouxel (Université de Nantes, Perancis) yaitu metode "Chimie Douce". Salah satu metode tersebut adalah metode hidrotermal (pelarut air) yaitu metode sintesis kristal dengan menggunakan alat bomb hidrotermal pada suhu sekitar 373 – 523 K dengan pelarut air. Hasil penelitian diharapkan berupa material mikropori-redoks titanium silikat yang memiliki kristalinitas dan kemurnian tinggi.

$[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Surrismo)

### Bahan dan Metode

#### Sintesis TS-1

Bahan-bahan yang digunakan pada sintesis TS-1 adalah tetraetil ortosilikat TEOS (98%, Aldrich) sebagai sumber silika, tetrapropil amonium hidroksida TPAOH (20%, Aldrich) sebagai sumber senyawa organik dan kristal  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$  sebagai sumber titanium. Kristal ini dihasilkan dari reaksi larutan  $TiOCl_2$  dengan  $H_2O$  pada kondisi kelembaban terkontrol.

Sintesis TS-1 dilakukan dengan mereaksikan bahan-bahan di atas dengan perbandingan mol bahan awal (gel) adalah  $0,05 TiO_2 : SiO_2 : 0,36 TPAOH : 35 H_2O$ . Gel dipanaskan dan diaduk secara perlahan-lahan pada suhu 353 K, selama kurang lebih 5 jam. Selanjutnya kristal putih diperoleh dari metode hidrotermal yaitu pemanasan gel pada teflon berlapiskan baja pada suhu 423 K selama 48 jam. Kristal disaring dan dicuci dengan air beberapa kali, selanjutnya dipanaskan dalam oven pada suhu 393 K selama 12 jam. Kristal ini diberi simbol sebagai TS-1. Sebagian dari sampel tersebut (TS-1) dikalsinasi pada suhu 833 K selama 5 jam dan disimbolkan TS-1C.

#### Karakterisasi TS-1

Karakterisasi sampel dilakukan dengan peralatan yang



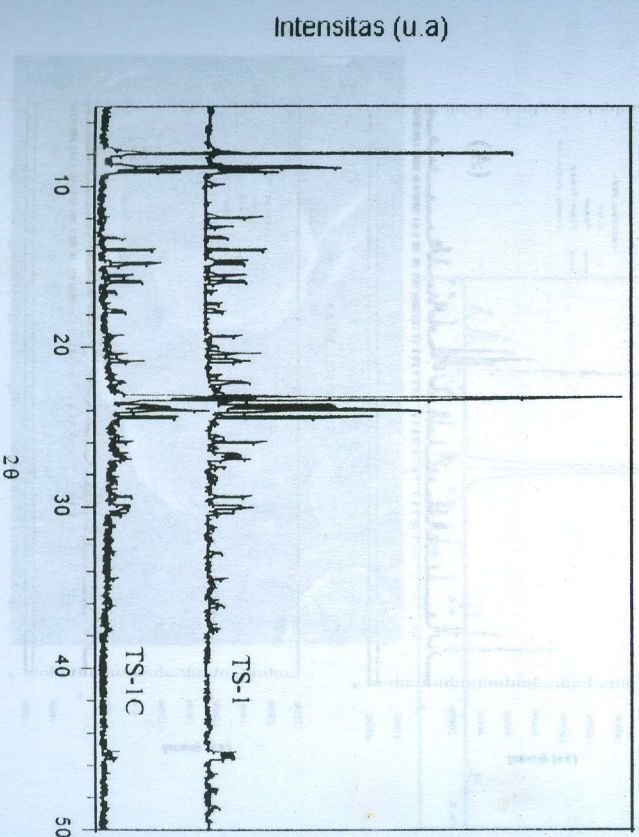
terdapat di Laboratoire de Chimie du Solide, Ecole Doctorale STIM-Université de Nantes, Perancis. Data difraksi sinar-X dikumpulkan dengan Difraktometer Sinar-X merk Siemens D5000 dengan radiasi  $\text{CuK}\alpha$  ( $\lambda=1.54051 \text{ \AA}$ ) pada kecepatan perikaman  $0,2^\circ$  ( $2\theta$ )  $\text{menit}^{-1}$ . Parameter struktur atau kisi-kisi kristal diperoleh dengan program TREOR yang tercakup dalam program SAMSON (Evain & Barbet, 1992). Penghalusan kisi-kisi kristal menggunakan program WinPlotr (Roissnel & Rodriguez-Carvajal, 2001).

Data spektra Infra Merah diperoleh dengan teknik KBr menggunakan Spektrofotometer IR (FTIR) merk Nicolet 20SXC. Pelet untuk bahan analisis FTIR dibuat dengan cara mencampurkan sebanyak 5 mg sampel dicampur dengan 200 mg KBr pada tekanan sebesar  $10 \text{ ton/cm}^2$ . Spektra FTIR direkam pada daerah gelombang  $400 - 4000 \text{ cm}^{-1}$ . Data spektra Raman diperoleh dengan pengukuran langsung sampel menggunakan Spektrofotometer Raman (FT-Raman) merk Nicolet 950 pada daerah gelombang  $25 - 3500 \text{ cm}^{-1}$ . Morfologi dan perbandingan mol Si/Ti pada sampel dilakukan dengan alat Mikroskop Elektron mode Sapuan (*Scanning Electron Microscopy*) yang dilengkapi alat Difraksi Elektron merk JEOL 6400.

$\text{Ti}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})_2 \cdot \text{Cl}_8 \cdot \text{HCl} \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Sutrisno)

## HASIL DAN PEMBAHASAN Difraksi Sinar-X

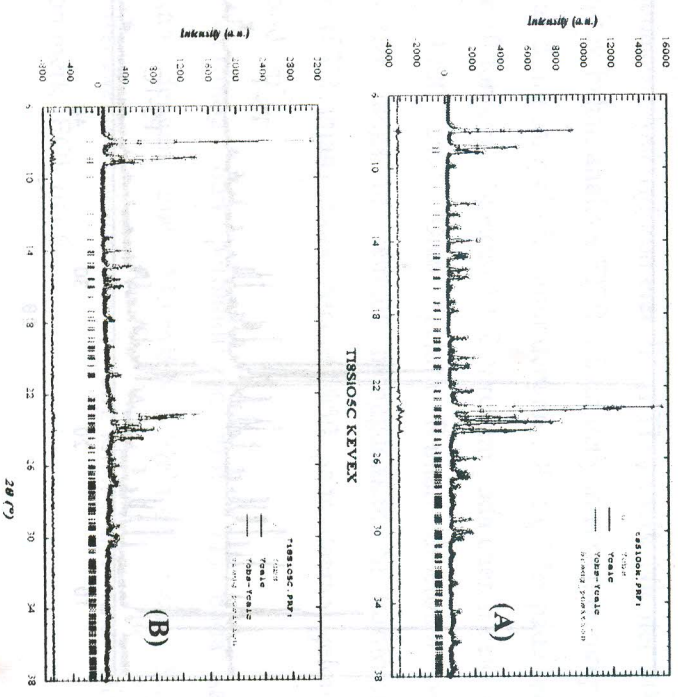
Grafik difraksi sinar-x TS-1 dan setelah kalsinasi (TS-1C) dapat dilihat pada Gambar 5. Grafik tersebut menunjukkan TS-1 dan TS-1C memiliki kristalinitas zeolit tipe MFI yang tinggi, hal ini ditandainya kemunculan spektra pada  $2\theta = 9,89^\circ$ ,  $13,96^\circ$ ,  $14,65^\circ$ ,  $20,95^\circ$  dan  $24,35^\circ$ . Tidak adanya spektra khusus  $\text{TiO}_2$  dapat disimpulkan bahwa kemurnian zeolit ini sangat tinggi.



Gambar 5. Difraksi Sinar-X Senyawa TS-1 dan TS-1C



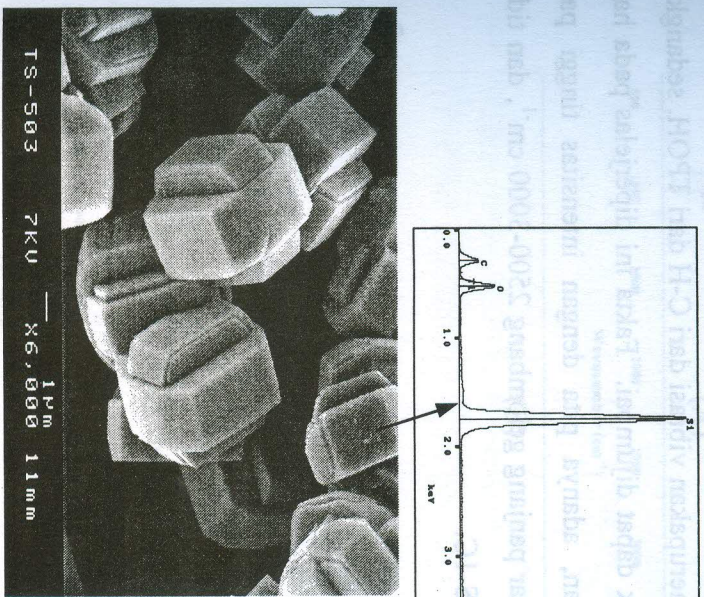
Penentuan sistem kristal TS-1 dan TS1C dilakukan dengan bantuan program TREOR dan Winplotr. Hasil analisis menunjukkan bahwa TS-1 memiliki sistem kristal ortorombik, *Pnma* dengan kisi-kisi kristal : a = 20,044 Å; b = 19,929 Å; c = 13,400 Å;  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ , sedangkan TS-1C : monoklinik, *P2<sub>1</sub>/n.1.1* dengan kisi-kisi kristal : a = 20,068 Å; b = 19,897 Å; c = 13,389 Å;  $\alpha = 90,024^\circ$ ;  $\beta = \gamma = 90^\circ$ . Grafik hasil analisis dengan bantuan program Winplotr tampak pada Gambar 6.



Gambar 6. Grafik Penghalusan dengan Program WinPlotr : (A). TS-1 dan (B). TS-1C

**Mikroskop Elektron Mode Saputan**

Studi morfologi kristal dianalisis dengan Mikroskop Elektron mode Saputan. Hasil pengukuran seperti tampak pada Gambar 7, menunjukkan bahwa TS-1 membentuk kristal kembar yang memiliki kristalinitas yang tinggi dengan dimensi kristal sekitar 6 x 4,5 x 2,5 µm. Dari hasil pengukuran dengan alat Difraksi Elektron diketahui perbandingan mol Si/Ti dalam TS-1 sebesar 59.



Gambar 7. Difraksi Elektron dan Morfologi TS-1

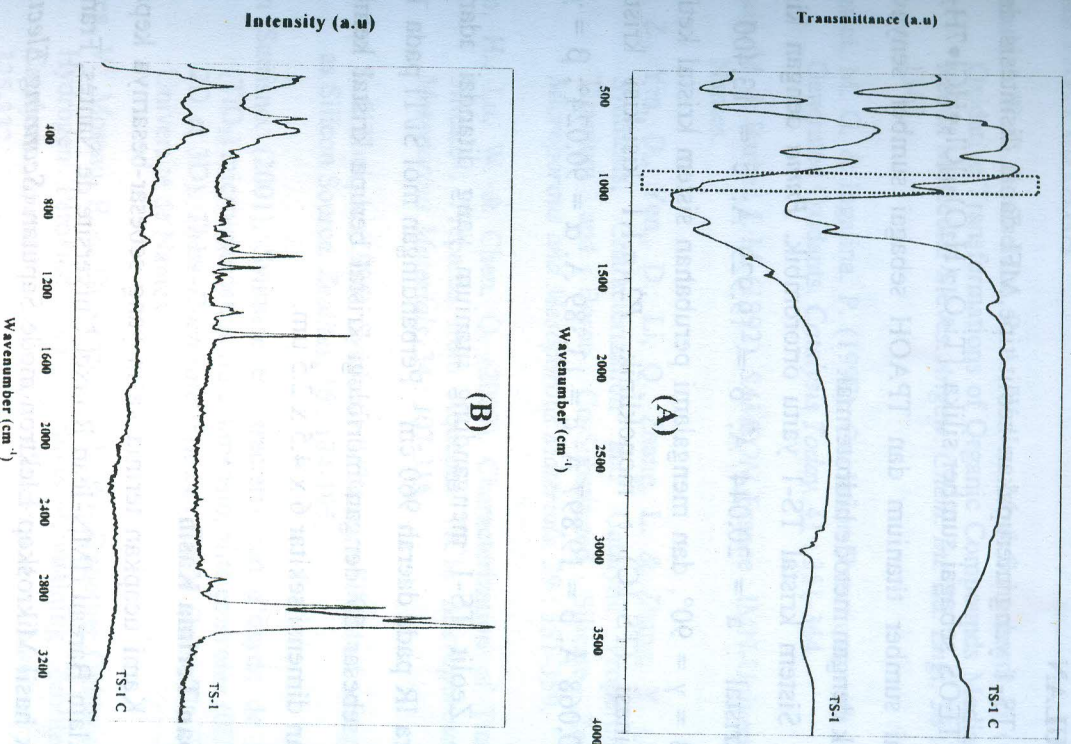


### Spektroskopi Infra Merah dan Raman

Hasil karakterisasi FT-IR dan FT-Raman dari TS-1 dan TS-1C tampak pada Gambar 8A dan 8B. Spektre FT-IR (Gambar 8A) untuk TS-1 dan TS-1C, ditemukan pita pada 557 dan 1225  $\text{cm}^{-1}$  yang merupakan pita karakteristik dari zeolit tipe MEL atau MFI (Fu et al., 1999). Pita FTIR pada daerah 960  $\text{cm}^{-1}$  merupakan pita sidik jari dari vibrasi Ti-O-Si (Serrano, Uguina, Ovejero, Grieken & Camacho, 1995). Pada kristal TS-1 dijumpai pita sekitar 2800-3000  $\text{cm}^{-1}$  yang merupakan vibrasi dari C-H dari TPOH, sedangkan pada TS-1C tidak dapat dijumpai. Fakta ini diperjelas pada hasil spektre FT-Raman, adanya pita dengan intensitas tinggi pada kristal TS-1 sekitar panjang gelombang 2500-3000  $\text{cm}^{-1}$ , dan tidak dijumpai untuk TS-1C.



$\text{Ti}_8\text{O}_2(\text{H}_2\text{O})_2\text{Cl}_6 \cdot \text{HCl} \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Surtisno)



Gambar 8. Spektre FT-IR (A) dan FT-Raman (B) : TS-1 dan TS-1C



## SIMPULAN

TS-1 yang merupakan zeolit tipe MFI dapat disintesis dari reaksi TEOs sebagai sumber silika,  $[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$  sebagai sumber titanium dan TPAOH sebagai sumber senyawa organik dengan metode hidrotermal.

Sistem kristal TS-1 yaitu ortorombik. *Prima* dengan kisi-kisi kristal :  $a = 20,044 \text{ \AA}$ ;  $b = 19,929 \text{ \AA}$ ;  $c = 13,400 \text{ \AA}$ ;  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ , dan mengalami perubahan sistem kristal ketika dikalsinasi (TS-1C) : monoklinik. *P2<sub>1</sub>/n.1.1* kisi-kisi kristal:  $a = 20,068 \text{ \AA}$ ;  $b = 19,897 \text{ \AA}$ ;  $c = 13,389 \text{ \AA}$ .  $\alpha = 90,024^\circ$ ;  $\beta = \gamma = 90^\circ$ .

Zeolit TS-1 mengandung titanium yang ditandai adanya spektra IR pada daerah  $960 \text{ cm}^{-1}$ . Perbandingan mol Si/Ti pada TS-1 ini sebesar 59 dengan morfologi kristal berupa kristal kembar dengan dimensi sekitar  $6 \times 4,5 \times 2,5 \text{ \mu m}$ .

## Ucapan Terima Kasih

Kami ucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada M. Alain Bateau (IMN-Jean Rouxel Université de Nantes, France) untuk hasil Mikroskop Elektron mode Saputan (*Scanning Electron Microscopy*).

$[Ti_8O_{12}(H_2O)_{24}]Cl_8 \cdot HCl \cdot 7H_2O$  Sebagai Sumber Titanium untuk Preparasi Zeolit Titanium Silikat (TS-1) (Hari Sutrisno)

## DAFTAR PUSTAKA

- Arends, I. W. C. E., Sheldon, R. A., Wallau, M. & Schuchardt, U. (1997). Oxidative Transformations of Organic Compounds Mediated by Redox Molecular Sieves. *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 36 : 1144-1163.
- Clerici, M. G. & Ingalina, P. (1998). Oxidation Reactions with In Situ Generated Oxidants. *Catalysis Today*, 41 : 351-364.
- Evain, M. & Barbet, J. M. (1992). *SAMSON*. France : IMN-Université de Nantes.
- Fu, Z., Yin, D., Yen, D., Li, Q., Zhang, L. & Zhang, Y. (1999). Synthesis, Characterization and Catalytic Properties of Titanium and Boron Co-Substituted Silicate Zeolites. *Microporous and Mesoporous Materials*, 29 : 351-359.
- Gao, H., Lu, W. & Chen, Q. (2000). Characterization of Titanium Silicate-1 Prepared from Aqueous  $TiCl_3$ . *Microporous and Mesoporous Materials*, 34 : 307-315.
- Gontier, S. & Tuel, A. (1996). Synthesis of Titanium Silicate-1 using  $SiO_2$  as Silicon Source. *Zeolites*, 16 : 184-195.
- Hari Sutrisno. (2001). Synthèse et caractérisation d'oxyde de titane ( $TiO_2$ ) micro-mesostructuré à dimensionnalité contrôlée (0D, 1D, 2D et 3D). *Thèse-Doctorale*. France : Ecole Doctorale STIM-Université de Nantes.
- Hulea, V., Moreau, P. & Di Renzo, P. (1996). Thioether Oxidation by Hydrogen Peroxide Using Titanium-Containing Zeolites as Catalysts. *Journal of Molecular Catalysis A : Chemical*, 111 : 325-332.
- Jorda, E., Tuel, A., Teissier, R. & Kervennal, J. (1997).  $TiF_4$  : As Precursor of Titanium Silicate-1. *Zeolites*, 19 : 238-241.



- Moreau, P., Hulea, V., Gomez, S., Brunel, D. & Di Renzo, P. (1997). Oxidation of Sulfoxides to Sulfones by Hydrogen Peroxide over Ti-containing Zeolites. *Applied Catalysis A: General*, 155: 253-263.
- Serrano, D. P., Uguina, M.A., Ovejero, G., Van Grieken, R. & Camacho, M. (1995). Synthesis of TS-1 by Wetness Impregnation of Amorphous  $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$  Solids Prepared by the Sol-Gel Method. *Microporous Materials*, 4 : 273-282.
- Roisnel, T & Rodriguez-Carvajal, J. (2001). *WinPlotr Program*. France : LLB-LCSIM Rennes.
- Taramasso, M., Perego, G. & Notari, B. (1983). *U.S. Pat.* 4 410 501.
- Taramasso, M. & Neri, C. (1983). *U.S. Pat.* 4 396 783.
- Tatsumi, T., Nakamura, M., Negishi, S. & Tominaga, H. (1990). Shape-selective Oxidation of Alkenes with  $\text{H}_2\text{O}_2$  Catalysed by Titanosilicate. *Journal of Chemical Society, Chemical Communication*, 476-477.
- Thangaraj, A., Eapen, M.J., Sivasanker, S. & Ratnasamy, P. (1991). Studies on the Synthesis of Titanium Silicate (TS-1). *Zeolites*, 12 : 943-950.
- Wang, X. & Guo, X. (1999). Synthesis, Characterization and Catalytic Properties of Low Cost Titanium Silicate. *Catalysis Today*, 51: 177-186.

## ANALISIS GMR Ag-Fe PADA PEMBUATAN BAHAN SENSOR MEDAN MAGNET DENGAN METODA IMPLANTASI ION

Oleh:

Edi Istiyono

Staf Pengajar FMIPA UNY

### Abstract

The national instrumental industries need support materials that have good electrical and magnetic properties. One is for sensor to measure magnetic field, i.e.: magnetic layer. The experiment is to find material for magnetic layer that has high GMR ratio required for sensor. The sample is an Ag-Fe thin film produced by ion implantation: silver implanted with iron ions at various doses from  $1.5 \times 10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup> to  $9.0 \times 10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup> and energy from 40 keV to 100 keV. GMR is determined by four-point probe method in magnetic field. Based on data analysis is concluded that: (1) Increasing of iron ions in Ag-Fe that produced by ion implantation causes decreasing of resistivity. Initially, increasing of annealing temperature causes decreasing of resistivity to minimum point, then the resistivity increases by increasing of annealing temperature; (2) Influence of ions dose, energy and annealing temperature to GMR: (a) Initially, increasing of iron ions increases GMR ratio to the maximum point, then the GMR ratio decreases. (b) Increasing of the ion energy that is used the GMR ratio produced decreases and (c) Increasing of annealing temperature can rise GMR ratio; (3) Ag-Fe for ion dose of  $6.0 \times 10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>, energy of 100 keV, and annealing temperature at 300 °C has a minimum resistivity of  $(16.7 \pm 3) \times 10^9 \Omega\text{m}$  and optimum of GMR ratio of 6.49%. Ag-Fe in the condition is a good material for magnetic field sensor; and (4) the curves of magneto-resistance are simetry and maximum resistance about magnetic field equal to zero.

Keywords: sensor, ion implantation, ion dose, and GMR

### PENDAHULUAN

Seiring dengan perkembangan ilmu pengetahuan dan teknologi (IPTEK), bidang elektronika mengalami perkembangan