

## PEMBUATAN SERBUK TIMAH OKSIDA NANO KRISTALIN DENGAN METODE SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA

Slamet Widodo dan Tony Kristiantoro

PPET-LIPI, Jl. Sangkuriang Komp. LIPI Bandung 40135

No.Telp/Fax:022-2504660/022-2504659,

E-mail: [slametwidodo50@gmail.com](mailto:slametwidodo50@gmail.com) dan [slametwi\\_dodo@yahoo.co.id](mailto:slametwi_dodo@yahoo.co.id)

### ABSTRAK

Makalah ini menggambarkan pembuatan partikel nano kristalin SnO<sub>2</sub> telah disintesis dengan metode sol gel sederhana . Diperoleh serbuk timah oksida telah dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X, mikroskop elektron (SEM), dan Fourier Transform spektroskopi inframerah (FTIR). Hasilnya menunjukkan bahwa ada jenis pembentukan rutil (struktur tetragonal ) dalam kisaran nanometric (14,68 nm). Pada suhu kalsinasi 400 °C tidak ada perubahan struktur lebih lanjut karena kehilangan massa terjadi. Disarankan bahwa analisis termal harus dilakukan dalam gas argon karena gas nitrogen lebih reaktif. Spektrum FTIR dari SnO<sub>2</sub>, menunjukkan tiga puncak pada 665 (bahu), 615, dan 494 cm<sup>-1</sup>. Band IR ini karena berbeda Sn – O atau Sn = O peregangan mode.

**Kata-kata kunci:** timah oksida SnO<sub>2</sub>, nano kristalin , sintesis , sol - gel , XRD, SEM, FTIR.

### ABSTRACT

This paper describes the Nanosized SnO<sub>2</sub> particles have been synthesized by a simple sol-gel method. The obtained tin oxide powder has been characterized using X-ray powder diffraction, scanning electron microscope (SEM), and fourier transform infrared spectroscopy (FTIR). The result shows that there is the formation rutil type (tetragonal) structure in nanometric range (14.68 nm). Analysis was executed to confirm that at 400°C (the calcinations temperature) no further structural changes due to mass loss occur. It is recommended that the thermal analysis should be done in argon gas because nitrogen gas is more reactive. The IR bands are due to different Sn-O or Sn=O stretching modes and its lattice modes at 615 and 494 cm<sup>-1</sup>.

**Keywords:** tin oxide SnO<sub>2</sub>, nano crystalline, synthesis, sol-gel, XRD, SEM, FTIR.

### PENDAHULUAN

Dalam oksida (SnO<sub>2</sub>) memiliki struktur non-stoikiometrik dan celah pita lebar khas tipe-n semikonduktor (3,6 eV) [1]. Ini adalah salah satu luas digunakan semikonduktor oksida logam karena kestabilan kimia dan mekanik. Berkaitan dengan elektronik, magnetik dan optik sifat unik, semikonduktor nano partikel sized partikel SnO<sub>2</sub> dapat menemukan aplikasi luas di berbagai bidang, seperti mikroelektronik, fotokatalisis, optik nonlinier, fotoelektron-kimia, ilmu pencitraan, dan electrooptics [2]. Hal ini diketahui bahwa timah oksida, dalam film tipis atau bentuk tebal [3] adalah bahan semikonduktor yang paling banyak digunakan untuk aplikasi penginderaan gas. Sifat SnO<sub>2</sub>

yang mengontrol aplikasi potensinya tergantung pada fase yang berbeda dari sejarah fabrikasi, yaitu, rute sintesis dan metode. Selain kimia dari materi, sifat morfologi serbuk mempengaruhi sifat fisik dan kimianya. SnO<sub>2</sub> dapat disintesis menggunakan berbagai teknik seperti metode hidrotermal [4], amorf rute sitrat [5], metode mekano-kimia [6], metode sol gel [7], mini busur plasma [8], sintesis flame spray [9] dan reaksi solid-state [10]. Dalam proses sol-gel larutan prekursor ditransformasikan menjadi anorganik padat oleh (a) dispersi dari partikel koloid dalam cairan (sol) dan (b) konversi sol ke fase kaku (gel) oleh hidrolisis dan kondensasi reaksi [11]. Untuk berbagai aplikasi, partikel nanosized atau besar luas permukaan spesifik sangat penting untuk kinerja tinggi. Di antara

metode sintesis yang berbeda untuk persiapan timah oksida, metode sol gel menawarkan beberapa keunggulan dibandingkan metode lain. Serta metode ini menurunkan suhu pengolahan, baik homogenitas, stoikiometri terkontrol, dan fleksibilitas membentuk monolit padat, film tipis, atau nanopartikel. Dalam tulisan ini disajikan pembentukan dan sifat partikel SnO<sub>2</sub> nanosized menggunakan sol- gel rute. Perhatian khusus telah dibuat untuk mempersiapkan partikel dalam kisaran nanometrik. Morfologi lengkap telah dianalisis dengan SEM dan FTIR.

## EKSPERIMEN

Metode proses sol-gel melibatkan penggunaan timah tetraklorida pentahidrat (SnCl<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O) dan larutan amonia (NH<sub>4</sub>OH). Larutan timah klorida dibuat dengan melarutkan butiran SnCl<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O kedalam air bebas mineral (de-ionized water). Sekarang NH<sub>4</sub>OH secara bertahap ditambahkan ke dalam larutan yang telah disiapkan yaitu larutan timah klorida dengan pengadukan terus menerus. Setelah beberapa saat endapan putih timah hidroksida [Sn(OH)<sub>4</sub>] muncul dalam bentuk produk reaksi diberikan di bawah ini:



Dalam reaksi ini, amonia berlebih ditambahkan untuk mengkonversi semua timah klorida ke dalam timah hidroksida. Setelah ini endapan dicuci dengan air bebas mineral sehingga untuk menghilangkan ion amonia berlebih dan amonium klorida. Sekarang, endapan disaring dan dikeringkan dalam oven pada sekitar 150 °C selama 1 jam. Produk yang diperoleh adalah timah hidroksida yang dikalsinasi pada 400 °C selama empat jam untuk mendapatkan partikel timah oksida. Reaksi kimia yang sama diberikan di bawah ini:



Timah oksida yang diperoleh dengan metode sol gel ini kekuningan. Resultan timah oksida bubuk diserahkan untuk analisis difraksi sinar-X (XRD). Pengukuran dilakukan pada bubuk Difraktometer X-ray Rigaku, Miniflex II

menggunakan radiasi CuK $\alpha$  ( $\lambda = 1,541836$ ). Sudut datang ditetapkan sebagai  $2\theta$  untuk pengukuran. Pola ini tercatat dari 20 sampai 80°. Pola XRD timah oksida bubuk dikonfirmasi dengan membandingkan dengan JCPDS (Joint Committee on Powder Diffraction Standards) data. Pemindaian mikroskop elektron (SEM) gambar dari permukaan film tebal diperoleh pada 2  $\mu\text{m}$  dan 200 nm pembesaran. Morfologi dan struktur bubuk dianalisa dengan gambar-gambar ini. Energi - dispersif (EDX) fasilitas yang ada dengan Zeiss SUPRA - 40 Scanning Electron Microscope (SEM). EDX menegaskan kehadiran unsur-unsur. Informasi tambahan tentang bubuk morfologi diperoleh dengan menggunakan Transformasi Fourier spektroskopi inframerah (FTIR) Model JAPAN Shimadzu 84005 IR spektrometer antara 4.000-400  $\text{cm}^{-1}$  rentang. Transmisi spektrum diperoleh dari pelet sampel timah oksida diencerkan dalam KBr.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

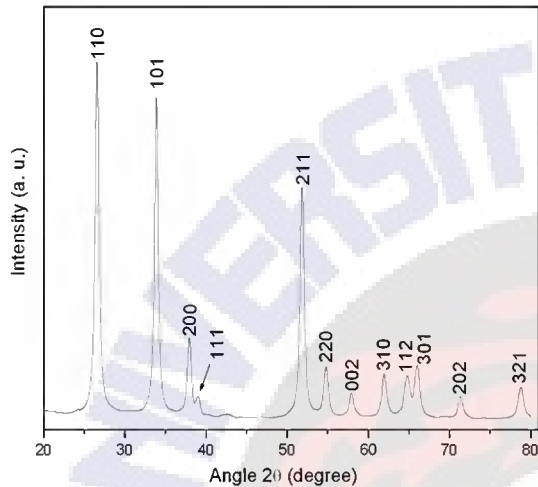
### Analisis Difraksi A. X – Ray

Pola difraksi sinar-X dari butiran oksida timah (SnO<sub>2</sub>) dibuat dengan metode sol gel ditunjukkan pada **Gambar 1**. Pola diamati memiliki sejumlah puncak yang tajam di (110), (101), (200), (211) dan (220) pada sudut yang berbeda ( $2\theta$ ). Maxima dari (110) puncak diamati hampir pada  $2\theta = 26,50$ . Semua puncak difraksi yang sesuai dengan struktur rutil (tetragonal) timah oksida dengan kisi konstanta  $a = 4,7355$  dan  $c = 3,1879$  (JCPDS File No # 41-1445). SnO<sub>2</sub> konstanta kisi  $a$  dan  $c$  diperoleh dengan penyempurnaan dari data XRD. Tidak ada puncak pengotor fase kristal ekstra telah terdeteksi. Sangat menarik bahwa puncak difraksi yang diperluas ternyata, hal ini menunjukkan partikel nanosized kecil. Ukuran partikel dihitung dari hasil XRD menggunakan rumus Scherrer terkenal [12].

$$D = k \lambda / (\beta \cos \theta) \quad (3)$$

dimana,  $D$  adalah ukuran partikel rata-rata;  $\lambda$  adalah panjang gelombang sinar-X (CuK $\alpha$  - 1,541836);  $k$  adalah konstanta Scherrer (0,9) dan

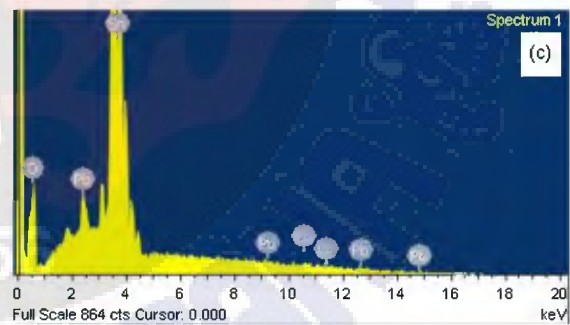
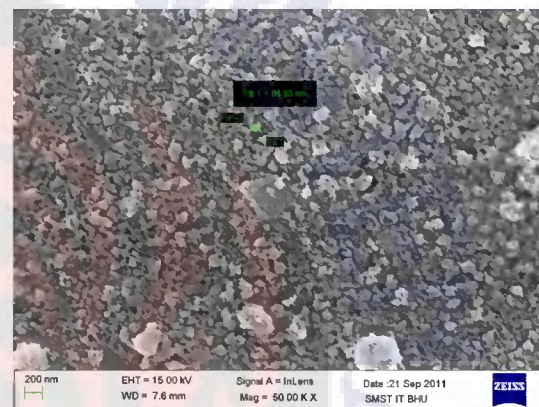
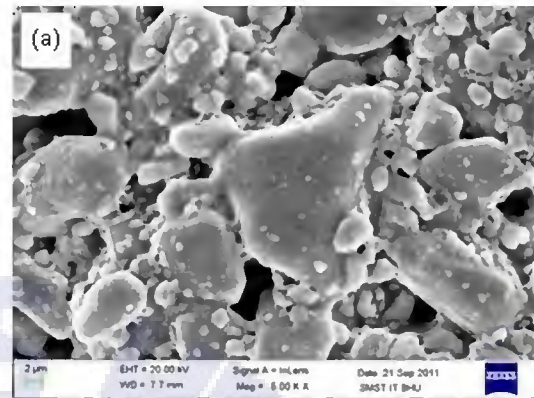
$\beta$  adalah lebar sudut puncak difraksi pada setengah maksimum (FWHM) dalam radian untuk sudut difraksi ( $2\theta$ ). Ukuran partikel rata-rata ditentukan dari yang paling puncak intens (110) sebesar 26,5 derajat ( $2\theta$ ). Metode sol-gel menghasilkan sangat kecil partikel 14,68 nm.



**Gambar 1.** Pola difraksi sinar-X dari butiran timah oksida ( $\text{SnO}_2$ ) dibuat dengan metode sol - gel

## B. SEM mikrograf

Gambar morfologi dengan SEM dari timah oksida ( $\text{SnO}_2$ ) tebal pada perbesaran yang berbeda ditunjukkan pada **Gambar 2** (a) dan (b). Hal ini dapat diamati bahwa partikel  $\text{SnO}_2$  yang dipersiapkan baik-baik saja dan beberapa aglomerasi partikel yang lebih halus untuk membentuk kelompok yang lebih besar. Namun ada beberapa non - keseragaman dalam bentuk dan keberadaan porositas. Diukur ukuran partikel rata-rata dari partikel timah oksida dari citra SEM adalah 64 nm, yang lebih besar dibandingkan dengan XRD ditentukan ukuran partikel. Sebuah peningkatan dalam ukuran partikel dicetak bentuk film tebal timah oksida adalah karena penembakan di  $800^\circ\text{C}$ , sehingga partikel mengikat dan aglomerasi [13].



**Gambar 2.** SEM gambar di (a) perbesaran rendah, (b) perbesaran tinggi dan (c) Analisis EDX struktur tetragonal  $\text{SnO}_2$

**Gambar 2** (c) menggambarkan sebuah analisis X-ray spektroskopi dispersi energi dari bubuk, yang dilakukan digabungkan dengan mikroskop elektron scanning, yang menunjukkan komposisi kimia hadir dalam spektrum 1. Ini menggambarkan bahwa hanya timah, oksigen dan komponen utama yang hadir. Sebenarnya bahan aktif dari pasta film tebal adalah oksida

timah, Frit kaca (kaca lead) dan pelarut organik [14]. Memimpin digunakan sebagai aditif untuk menempel pasta pada substrat alumina untuk membuat film tebal. Pelarut organik akan dihapus setelah menembak film tebal di 800 °C selama 10 menit. di tengah zona tungku belt. Dalam sampel komponen elemen oksigen (atom %) diamati untuk menjadi hampir dua kali lipat dari timah, sehingga mengkonfirmasi komposisi kimia menjadi SnO<sub>2</sub>.

**Tabel 1.** Komposisi Unsur Kimia Dalam Spektrum-1

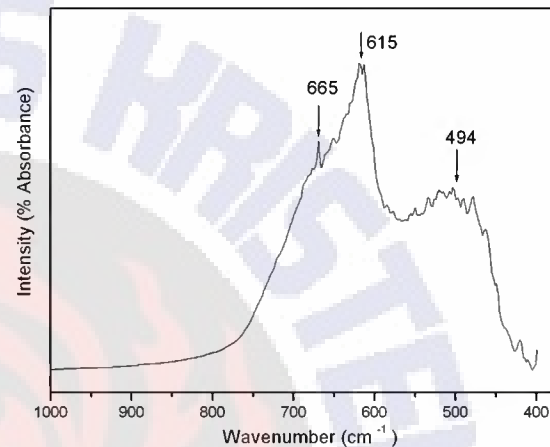
Sampel	Elemen	% Berat	% Atom
1	Sn (Timah)	382.43	20.42
2	O (Oksigen)	199.26	78,94
3	Pb (Timbal)	20.91	0.64

Dapat disimpulkan bahwa metode sol gel menghasilkan partikel kecil yang terbaik untuk aplikasi penginderaan (sensor). Porositas juga memfasilitasi untuk meningkatkan penginderaan [15]. Di tempat lain, dilaporkan [16] bahwa berukuran nano partikel menyediakan area permukaan besar memfasilitasi proses cepat chemisorptions. Oleh karena itu, ukuran partikel kecil meningkatkan area aktif permukaan sensor, adsorpsi konsekuensinya lebih tinggi dari oksigen dan mengurangi gas yang meningkatkan sensitivitas sensor [17].

### C. Fourier Transform Infrared Analisis (FTIR)

Spektrum FTIR bubuk timah oksida (SnO<sub>2</sub>) nano partikel yang dibuat dengan metode sol gel ditunjukkan pada Gambar 3, dimana dalam SnO<sub>2</sub> memperlihatkan dua puncak yaitu pada posisi di 615 dan 494 cm<sup>-1</sup> dan bahu berpusat pada 665 cm<sup>-1</sup>. Posisi, intensitas relatif dan lebar pita penyerapan IR padatan polar mikrokristalin sangat dipengaruhi oleh bentuk dan aglomerasi partikel [19]. Ini inkonsistensi dari spektrum FTIR dari serbuk ini terutama disebabkan oleh polarisasi pada permukaan partikel dengan interaksi dengan medan elektromagnetik dari radiasi insiden. Dalam hal ini, beberapa band yang diperoleh, yang berkaitan dengan mode getaran yang normal dimodifikasi oleh faktor

bentuk. Dalam rentang antara 400-1000 cm<sup>-1</sup> dua puncak tajam pada 615 dan 494 cm<sup>-1</sup> diperlihatkan dan disebabkan oleh berbagai mode peregangan yaitu Sn – O atau Sn – O – Sn [8]. Selain itu, kalsinasi pada 400 °C menyebabkan dekomposisi lengkap senyawa organik.



**Gambar 3.** Spektrum FTIR butiran timah oksida

### KESIMPULAN

Butiran SnO<sub>2</sub> nano partikel dibuat dengan metode sol-gel. Pola XRD sesuai dengan tipe struktur rutil (tetragonal). Ukuran partikel ditentukan dengan metode Scherrer menunjukkan bahwa butiran timah oksida berada pada kisaran nanometer yaitu 14,68 nm. SEM menunjukkan agregasi yang berbeda dari berukuran nano partikel SnO<sub>2</sub> dan juga kehadiran porositas. Porositas membantu meningkatkan penginderaan. Ada sedikit perbedaan antara SnO<sub>2</sub> penentuan ukuran partikel dengan metode Scherrer dan ukuran partikel penentuan oleh gambar SEM karena partikel mengikat dan aglomerasi.

Analisis termal menunjukkan fitur spektral yang berbeda butiran SnO<sub>2</sub>, dalam ketergantungan pada atmosfer di mana karakterisasi yang telah dilakukan dengan gas nitrogen lebih reaktif dibandingkan gas argon. Disarankan bahwa analisis termal timah oksida harus dilakukan dalam suasana argon. Analisis termal juga

menegaskan bahwa suhu kalsinasi pada 400 °C perubahan struktural akibat kehilangan massa terjadi. Spektrum FTIR dari SnO<sub>2</sub>, menunjukkan tiga puncak pada 665 (bahu), 615, dan 494 cm<sup>-1</sup>. Band IR ini karena berbeda Sn – O atau Sn = O peregangan mode.

XRD dan SEM menggambarkan bahwa ada pembentukan hasil nano partikel serbuk. EDX menegaskan komposisi kimia SnO<sub>x</sub> menjadi SnO. Semua karakteristik menunjukkan bahwa serbuk timah oksida nano partikel adalah terbaik untuk aplikasi sensor. Metode ini dapat dimanfaatkan untuk menghasilkan bahan aktif SnO<sub>2</sub> nano partikel untuk sensor gas.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] J. Robertson, "Electronic structure of SnO<sub>2</sub>, GeO<sub>2</sub>, PbO<sub>2</sub>, TeO<sub>2</sub>, and MgF<sub>2</sub>", *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 12, pp. 4767-4777, 1979.
- [2] F. Gu, S. F. Wang, M. K. Lu<sup>1</sup>, G. J. Zhou, D. Xu, and D. R. Yuan "Photoluminescence Properties of SnO<sub>2</sub> Nanoparticles Synthesized by Sol-Gel Method", *J. Phys. Chem. B*, vol. 108, pp. 8119-8123, 2004.
- [3] K. D. Schierbaum, U. Weimar and W. Gijpel, "Comparison of ceramic, thick-film and thin-film chemical sensors based upon SnO", *Sensors and Actuators B*, vol. 7, pp. 709-716, 1992.
- [4] S. Fujihara, T. Maeda, H. Ohgi, E. Hosono, H. Imai, S.-H. Kim, "Hydrothermal routes to prepare nanocrystalline mesoporous SnO<sub>2</sub> having high thermal stability", *A. Chem. Society*, vol. 20, pp. 6476-6481, 2004.
- [5] M. Bhagwat, P. Shah, V. Ramaswamy, "Synthesis of nanocrystalline SnO<sub>2</sub> powder by amorphous citrate route", *Materials Letters*, vol. 57, pp.1604-1611, 2003.
- [6] H. Yang, Yuehua Hu, Aidong Tang, Shengming Jin, Guanzhou Qiu, "Synthesis of tin oxide nanoparticles by mechanochemical reaction", *J. Alloys and Compounds*, vol. 363, pp. 271-274, 2004.
- [7] J. Zhang, and L. Gao, "Synthesis and characterization of nanocrystalline tin oxide by sol-gel method", *J. Solid State Chemistry*, vol. 177, pp. 1425-1430, 2004.
- [8] G. Lu, K. L. Huebner, L. E. Ocola, M. G. Josifovska, and J. Chen, "Gas Sensors Based on Tin Oxide Nanoparticles Synthesized from a Mini-Arc Plasma Source", *J. Nanomaterials*, vol. 2006, pp. 1-7, 2006.
- [9] T. Sahn, L. Mädler, A. Gurlo, N. Barsan, S.E. Pratsinis, U. Weimar, "Flame spray synthesis of tin dioxide nanoparticles for gas sensing", *Sens. Actuators B*, vol. 98 148-153, 2004.
- [10] F. Li, J. Xu, X. Yu, L. Chen, J. Zhu, Z. Yang, X. Xin, "One-step solid state reaction synthesis and gas sensing property of tin oxide nanoparticles", *Sens. Actuators B*, vol. 81, pp.165-169, 2002.
- [11] L. L. Hench and J. K. West, "The Sol-Gel Process", *Chem. Rev.*, vol. 90. pp. 33-72, 1990.
- [12] Taylor, "X-ray Metallography", John Wiley, New York, 1961, pp. 678-686.
- [13] Z. A. Ansari, S.G. Ansari, T. Ko, J. H. Oh, "Effect of MoO<sub>3</sub> doping and grain size on SnO<sub>2</sub>-enhancement of sensitivity and selectivity for CO and H<sub>2</sub> gas sensing," *Sensors and Actuators B* 87, pp.105-114, 2002.
- [14] S.K. Srivastava, R. Srivastava, R. Dwivedi, R.K. Srivastava, "Development and characterization of palladium doped tin oxide thick film paste for gas:odour sensors, *IETE J. Res.*, vol. 43, pp. 215-220, 1997.
- [15] W. Williams, A. G. Keeling, "Thick film tin oxide sensors for detecting carbon monoxide at room temperature", *J. Materials Science: Materials in Electronics*, vol. 9, pp. 51-54, 1998.
- [16] J. K. Srivastava, P. Pandey, V.N. Mishra, R. Dwivedi, "Structural and Microstructural studies of PbO-doped SnO<sub>2</sub> sensor for detection of methanol, propanol and acetone", *J. Natural Gas Chemistry*, vol. 20, pp. 179-183, 2011.
- [17] T. D. Senguttuvan, R. Rai, S. T. Lakshmikumar, "Gas sensing properties of lead doped tin oxide thick films", *Matter Letter*, vol. 61, pp. 582-584, 2007.
- [18] A. Die'guez, A. Romano-Rodriguez, J. R. Morante, U. Weimar, M. Schweizer-Berberich, and W. Gö'pel, *Sensors*, "Morphological analysis of nanocrystalline

SnO<sub>2</sub> for gas sensor applications”, Sens. Actuators. B, vol. 31, pp.1-8, 1996.

[19] W.W. Wendlandt, “Thermal Analysis”, 3rd ed., John Willey & Sons, New York, 1986, pp. 14-139.

## **DISKUSI**

**Pertanyaan : -**

