

# Stabilitas Termal dan Kristalinitas Komposit Polyvinylidene Fluoride) PVDF/SiO<sub>2</sub> Pasir Vulkanik Kelud

## *Thermal Stability and Crystallinity of Polyvinylidene Fluoride Composites PVDF/ SiO<sub>2</sub> of Kelud Volcanic Sand*

Ria Inus Sholikah, Woro Setyarsih, Istiqomah, Ajeng Hefdea, Entang Wulancahayani, Lydia Rohmawati\*  
Jurusan Fisika FMIPA, Universitas Negeri Surabaya  
Jln. Ketintang, Surabaya 60231

### ABSTRAK

*Polyvinylidene fluoride (PVDF)* merupakan material plastik yang memiliki konstanta piroelektrik dan piezoelektrik yang relatif tinggi sehingga dapat dijadikan sebagai bahan dielektrik pada superkapasitor. PVDF dikompositkan dengan SiO<sub>2</sub> untuk mendapatkan stabilitas termal dan kristalinitas yang mendukung sifat bahan dielektrik. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui karakteristik stabilitas termal dan kristalinitas dari PVDF/SiO<sub>2</sub>. Komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> disintesis menggunakan metode inversi fasa dengan variasi komposisi SiO<sub>2</sub> (1 wt%, 2 wt%, 3 wt%, 4 wt% dan 5 wt%) dan bahan dikarakterisasi menggunakan XRD dan analisis termal DSC/TGA. Hasil uji XRD menunjukkan bahwa puncak intensitas PVDF semakin menurun seiring dengan meningkatnya komposisi SiO<sub>2</sub> dalam komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>, ini disebabkan oleh kristalinitas PVDF yang mengalami penurunan akibat penyebaran partikel SiO<sub>2</sub> pada komposit. Hasil uji TGA menunjukkan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> dengan 2 wt% SiO<sub>2</sub> memiliki stabilitas termal paling baik. PVDF murni memiliki persen kristalinitas terbesar dibandingkan dengan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> yaitu 36.3%.

**Kata Kunci:** PVDF, SiO<sub>2</sub>, inversi fasa, stabilitas termal, kristalinitas

### ABSTRACT

*Polyvinylidene fluoride (PVDF)* is a plastic material that has relatively high pyroelectric and piezoelectric constants so that it can be used as a dielectric material in supercapacitors. PVDF is composed with SiO<sub>2</sub> to obtain thermal stability and crystallinity that support the properties of dielectric material. This study aimed to determine the characteristics of thermal stability and crystallinity of PVDF/SiO<sub>2</sub>. Composite PVDF/SiO<sub>2</sub> synthesized using phase inversion methods with composition variations of SiO<sub>2</sub> (1 wt%, 2 wt%, 3 wt%, 4 wt% and 5 wt%) and material characterized using XRD and DSC/TGA thermal analysis. X-Ray Diffraction measurement showed that the peak intensity of PVDF decreases as the number of SiO<sub>2</sub> composition in the composite PVDF/SiO<sub>2</sub>, this happens because the crystallinity of PVDF decline caused by the spread of SiO<sub>2</sub> particles in composite disrupt crystal growth of PVDF. TGA measurement showed that composite PVDF/SiO<sub>2</sub> - 2 wt% SiO<sub>2</sub> had the best thermal stability of the others composite. Pure PVDF had the largest percent crystallinity compared to composites PVDF/SiO<sub>2</sub> was 36.3%.

**Key Words:** PVDF, SiO<sub>2</sub>, phase inversion, thermal stability, crystallinity

### PENDAHULUAN

Polyvinylidene fluoride (PVDF) adalah material plastik yang memiliki konstanta piezoelektrik dan piroelektrik relatif tinggi (Katoch, 2009). kekuatan dielektriknya yang sangat tinggi (Esterly, 2002). PVDF memiliki stabilitas yang baik, modulus elastisitas tinggi dan tahan terhadap pelarut organik. PVDF menjadi material yang sangat berguna karena memiliki faktor disipasi rendah, permitivitas dan PVDF adalah polimer seikristal yang memiliki empat fase yang berbeda yaitu fasa  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  dan  $\delta$  (Esterly DM, 2002; Katoch, 2009; Rundqvist, 2013; Satapathy *et al*, 2011). PVDF dapat dijadikan sebagai bahan elektrik, yaitu bahan isolator listrik yang mampu terpolarisasi saat ditempatkan pada medan listrik (Sukron, 2015).

Menurut penelitian Katoch (2009) PVDF memiliki nilai dielektrik sebesar 7 F/m dengan titik lebur 171°C. Hal ini menunjukkan PVDF memiliki konstanta dielektrik cukup besar meskipun tidak tahan terhadap suhu tinggi. Oleh karena itu dibutuhkan material yang memiliki ketahanan panas tinggi agar PVDF dapat bekerja sebagai bahan dielektrik secara maksimal. Salah satu material yang memiliki ketahanan panas tinggi adalah silika (SiO<sub>2</sub>). SiO<sub>2</sub> memiliki titik leleh sebesar 1650 dan nilai dielektrik sebesar 11,68 F/m (Rines, 1992). Silika dapat ditemukan pada bahan tambang seperti pasir kuarsa, granit dan feldspar. Silika juga dapat ditemukan pada senyawa organik seperti sekam padi dan tongkol jagung (Monalisa, 2013). Pada penelitian ini, silika (SiO<sub>2</sub>) disintesis dari pasir vulkanik gunung kelud menggunakan metode

\*Alamat Korespondensi:  
Surel: lydiarohmawati@unesa.ac.id

kopresipitasi. Pasir vulkanik gunung kelud memiliki kaungan  $\text{SiO}_2$  cukup tinggi yaitu 70,6%. Selain senyawa silika ( $\text{SiO}_2$ ), pasir vulkanik gunung kelud juga memiliki kandungan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (9 %),  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (5,7%), Kalium (0,7%),  $\text{CaO}$  (5%), Sulfur (0,1%) (Nizar, 2016). Selain ketahanan panas, laju polarisasi juga dipengaruhi oleh derajat kristalinitas bahan (Sulistyo, 2015). Tanpa adanya kristalinitas, PVDF tidak dapat menunjukkan sifat piezoelektriknya (Ostasevicius, et al., 2010). Dengan demikian, pada penelitian dilakukan sintesis komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$  dengan metode inversi fasa dengan pelarut NMP (Sukron, 2015). Pada penelitian ini diharapkan mampu menghasilkan bahan dielektrik superkapasitor dengan memanfaatkan bahan tambang pasir vulkanik.

#### METODE PENELITIAN

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain yaitu, *Polyvinylidene fluoride* (PVDF) Sigma Aldric, *N-Methyl-2-pyrrolidone* (NMP) Sigma Aldric, Tetramethylammonium hidroksida (TMAH) Sigma Aldric, Natrium Hidroksida (NaOH) MERCK, Asam Klorida (HCl) Smart Lab Indonesia, Etanol ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ) Smart Lab Indonesia dan Aquades.

Peralatan yang digunakan terdiri dari peralatan utama dan peralatan pendukung. Peralatan utama antara lain Instrumen uji XRD dan Instrumen uji DSC/TGA. Peralatan pendukung terdiri dari Hot plate magnetic stirrer, Furnice, Timbangan digital, Gelas kimia 500 ml dan 25 ml, Gelas ukur, Pipet, Cawan porselin, Mortar alu, Kertas saring, Kertas pH dan Crusibel alumina.

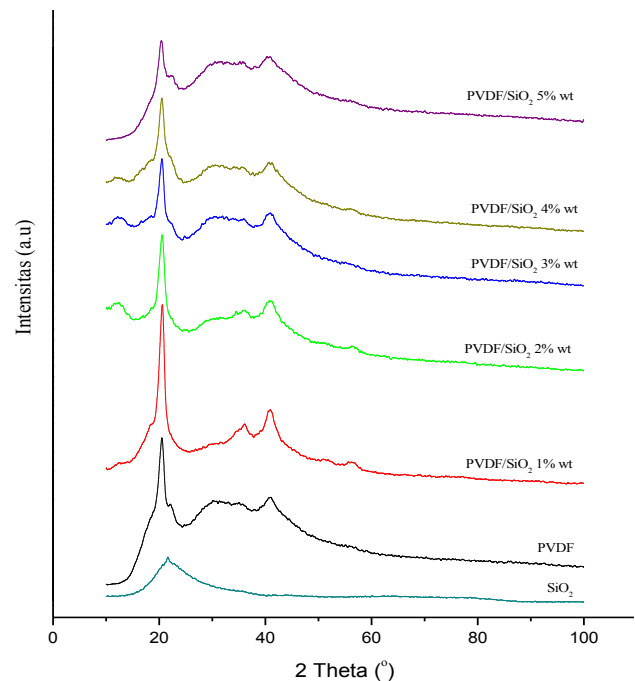
Langkah pertama dalam pembuatan komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$  ini yaitu proses sintesis silika dari pasir vulkanik kelud dengan metode kopresipitasi kemudian dikalsinasi pada suhu 300 °C selama 10 jam, 500 °C selama 10 jam dan 800 °C selama 17 jam. Setelah silika telah dibuat dilakukan proses selanjutnya yaitu pembuatan komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$  menggunakan metode inversi fasa dengan proses perendaman-pengendapan menggunakan koagulan air dan etanol. Proses perendaman-pengendapan ini merupakan suatu proses dimana larutan polimer dicetak pada lapisan pendukung yang sesuai, kemudian direndam dalam bejana koagulasi yang berisi larutan non solven (Hermasari R & Kusumawati N, 2013).

Proses sintesis komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$  ini dimulai dengan mengaduk menggunakan *magnetic stirrer*  $\text{SiO}_2$  yang ditetesi TMAH selama 1 jam. Selanjutnya campuran  $\text{SiO}_2$ +TMAH dicampur

dengan PVDF/NMP/ $\text{NH}_4\text{Cl}$  dan kemudian diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 1 jam pada suhu 40°C. Komposit ini selanjutnya dicetak pada kaca arloji dan direndam dalam bak koagulasi (campuran aquades+etanol dengan perbandingan 50:50) selama 30 menit setelah itu dicuci dengan aquades. Lalu komposit ini dikeringkan pada suhu 90 °C selama 5 jam. Setelah semua proses selesai dilakukan proses karakterisasi XRD dan DSC/TGA pada sampel.

#### HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraksi PVDF/ $\text{SiO}_2$  dapat diketahui melalui karakterisasi XRD. Pola difraksi sinar-X dari PVDF ditunjukkan pada Gambar 1.



**Gambar 1.** Pola Difraksi Sinar X dari PVDF,  $\text{SiO}_2$  dan komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$ .

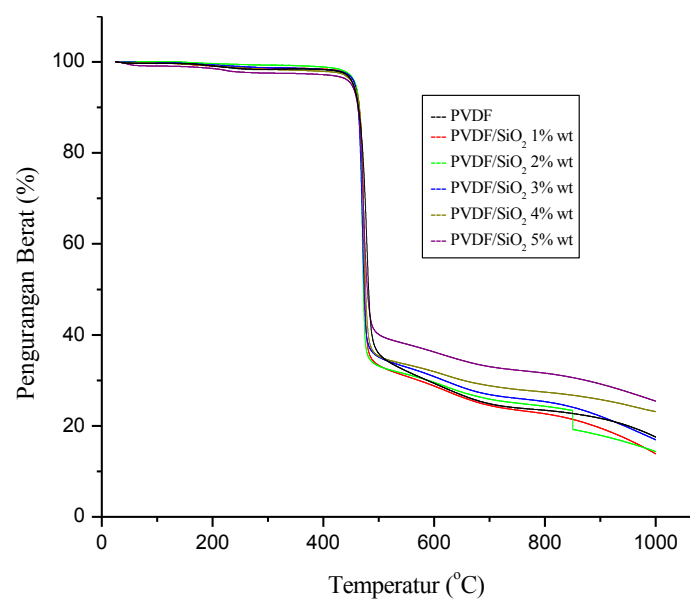
Pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa puncak intensitas PVDF semakin menurun seiring bertambahnya komposisi  $\text{SiO}_2$  dalam komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$ . Hal ini disebabkan oleh penurunan kristalinitas PVDF akibat adanya partikel  $\text{SiO}_2$  yang mengganggu pertumbuhan kristal dari PVDF (Cho JW & Kyung IW, 2001). Karakterisasi TGA dilakukan untuk mengetahui perubahan massa terhadap temperatur sehingga dapat menentukan stabilitas termal dari komposit PVDF/ $\text{SiO}_2$ . Hasil karakterisasi TGA ditunjukkan pada Gambar 2. Profil PVDF dan PVDF/ $\text{SiO}_2$  mengalami penurunan massa seiring bertambahnya suhu pemanasan. Penurunan massa dimulai pada suhu

450°C. Penurunan massa terjadi akibat adanya proses dekomposisi dan pemutusan ikatan kimia.

**Tabel 1.** Puncak Difraksi Sinar X PVDF, SiO<sub>2</sub> dan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>

2θ (°)	Referensi *	Fase	Hasil Eksperimen						
			SiO <sub>2</sub>	PVDF	PVDF/SiO <sub>2</sub> 1%	PVDF/SiO <sub>2</sub> 2%	PVDF/SiO <sub>2</sub> 3%	PVDF/SiO <sub>2</sub> 4%	PVDF/SiO <sub>2</sub> 5%
17.7	1	□ PVDF	-	-	17.74	-	-	-	-
19.9	2	□ PVDF	-	-	-	19.94	-	-	-
20.2	1, 3	□ PVDF	-	20.19	20.17	-	-	-	-
20.3	2, 3	□ PVDF	-	20.33	20.26	-	-	-	20.32
20.4	5	PVDF	-	-	-	-	20.40	20.42	-
21.6	4	SiO <sub>2</sub>	21.65	-	-	-	-	-	21.52
26.6	4	Quartz SiO <sub>2</sub>	-	-	26.4	-	-	-	-

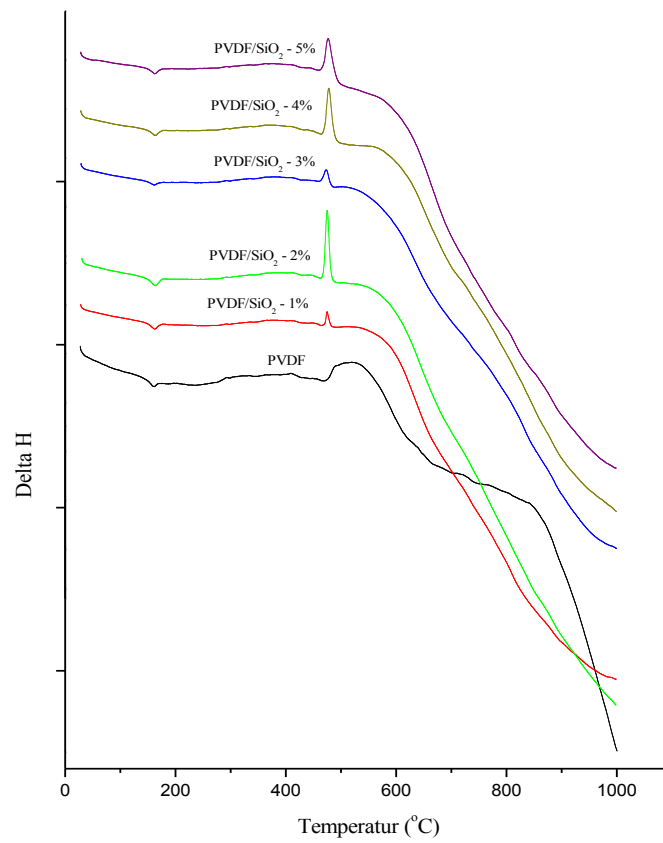
[1] Katoch, 2009 [2] Satapathy, et al., 2011 [3] Ostasevicius, et al., 2010 [4] Munasir, dkk., 2013 [5] Setiawan, & Ambran, 2015



**Gambar 2.** Kurva TGA dari PVDF dan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>

**Tabel 2.** Pengurangan berat serta kenaikan suhu pada PVDF dan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>

Nama sampel	Suhu dekomposisi I (°C)	Suhu dekomposisi II (°C)	Sisa berat sampel ketika suhu 1000 °C (%)
PVDF	454	-	17.55
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 1% wt	457.833	-	13.88
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 2% wt	458.167	849.8	14.36
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 3% wt	457	-	16.95
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 4% wt	454.5	-	23.13
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 5% wt	451	-	25.45



**Gambar 3.** Kurva DSC dari PVDF dan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>

**Tabel 3.** Titik leleh dan kristalinitas dari PVDF dan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub>

Nama Sampel	T <sub>c</sub> (°C)	T <sub>m</sub> (°C)	ΔH <sub>m</sub> (J/g)	□ (%)
PVDF	528.64	161.33	1461.5	36.3002
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 1%	474.78	162.80	55.21	2.62382
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 2%	475.00	163.80	204.91	16.3875
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 3%	473.26	161.43	129.79	4.43753
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 4%	477.80	163.45	277.67	16.1497
PVDF/SiO <sub>2</sub> - 5%	477.11	162.26	287.8	16.892

Titik leleh komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> dapat diketahui melalui karakterisasi DSC. Berdasarkan karakterisasi DSC dapat diketahui bahwa kristalinitas terbesar dimiliki oleh PVDF yaitu sebesar 36.3002% kemudian diikuti oleh komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> - 5% sebesar 16.892%, PVDF/SiO<sub>2</sub> - 2% sebesar 16.3875%, PVDF/SiO<sub>2</sub> - 4% sebesar 16.1497%, PVDF/SiO<sub>2</sub> - 3% sebesar 4.43753% dan PVDF/SiO<sub>2</sub> - 1% sebesar 2.62382%. Nilai kristalinitas berpengaruh terhadap keberadaan sifat

piezoelektrik bahan dielektrik. Penambahan SiO<sub>2</sub> pada pembuatan komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> dilakukan untuk menghasikan kristalinitas yang besar. Namun pada penelitian ini penambahan SiO<sub>2</sub> tidak membuat kristalinitas dari komposit semakin besar. Penambahan SiO<sub>2</sub> justru membuat kristalinitas dari sampel mengalami penurunan. Hal ini terjadi karena SiO<sub>2</sub> yang digunakan masih berstruktur amorf.

### SIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa penambahan massa SiO<sub>2</sub> dalam komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> berpengaruh pada proses dekomposisi yang terjadi sebanyak 2 kali. Penambahan SiO<sub>2</sub> dalam komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> menurunkan kristalinitas PVDF akibat SiO<sub>2</sub> yang masih berstruktur amorf. Komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> dengan 2 wt% SiO<sub>2</sub> memiliki stabilitas termal paling baik. Persen kristalinitas PVDF murni lebih besar daripada komposit PVDF/SiO<sub>2</sub> yaitu 36.3%.

### DAFTAR PUSTAKA

- Cho JW and Kyung IS, 2001. Crystallization of Poly (vinylidene fluoride)-SiO<sub>2</sub> Hybrid Composites Prepared by a Sol-gel Process. *Fibers and Polymers*, 2(3): 135- 140.
- Esterly DM, 2002. Manufacturing of Poly (vinylidene fluoride) and Evaluation of its Mechanical Properties. *Materials Science*.
- Hermasari R dan Kusumawati N, 2013. Pengaruh Komposisi Larutan Cetak Polyvinylidene fluoride (PVDF) dan Non Pelarut H<sub>2</sub>O/C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH terhadap Kinerja Membran Polyvinylidene Fluoride dalam Pemisahan Pewarna Indigo. *UNESA Journal Of Chemistry*, 2 (3).
- Katoch A, 2009. Structural and Dielectric Investigations of Nano Dispersed Poly (Vinylidene Fluoride) (PVDF) Composites. School of Physics and Materials science: Thapar University, Patiala, (Punjab).
- Monalisa Y, 2013. Pengaruh Variasi Suhu Annealing terhadap Struktur dan Ukuran Butir Silika dari Abu Tongkol Jagung Menggunakan X-Ray Diffractometer. *Pillar of Physic*, 1: 102-110.
- Munasir, Surahmat, Triwikantoro, Zainuri M & Darminto, 2013. Pengaruh Molaritas NaOH Pada Sintesis Nanosilika Berbasis Pasir Bancar Tuban. *Jurnal Penelitian Fisika dan Aplikasinya (JPFA)*, Vol 3(2).
- Nizar M, 2016. Sintesis SiO<sub>2</sub> sebagai Absorpsi Ion Pb<sup>2+</sup>. Tidak diterbitkan. FMIPA, Unesa: Surabaya.
- Ostasevicius V, Milauskaite I, Dauksevicius R, 2010. Experimental Characterization of Material Structure of Piezoelectric PVDF Polymer. *Mechanika*, 6 (6).
- Rines GE, 1920. Dielectric. *Encyclopedia Americana*. Online. Diakses tanggal 9 Agustus 2015 ([http://id.wikipedia.org/wiki/Encyclopedia\\_Americana](http://id.wikipedia.org/wiki/Encyclopedia_Americana))
- Rundqvist, K, 2013. Piezoelectric Behaviour of Woven Constructions Based on Poly (Vinylidene Fluoride) Bicomponent Fibres. The Swedish School of Textiles Report: University of Boras.
- Satapathy SP, Gupta PK & Varma KBR, 2011. Effect of Annealing on Phase Transition in Poly (Vinylidene Fluoride) Films Prepared Using Polar Solvent. *Bulletin of Material Sciences*, 34 (4).
- Setiawan, D & Ambran H, 2015. Analisis Pengaruh Variasi Temperatur Annealing Terhadap Ukuran Kristal Film PVDF. *Prosiding Seminar Nasional Fisika (E-Journal) SNF*.
- Sukron M, 2015. Studi Dielektrik Polyvinilidene Fluoride (PVDF)/SiO<sub>2</sub> dengan Variasi Penambahan Massa SiO<sub>2</sub>. Tidak diterbitkan. FMIPA, Unesa: Surabaya.
- Sulistyo DH, 2015. Studi Pengaruh Ukuran Butir Partikel dan Struktur Kristal terhadap Sifat Dielektrik Nanopartikel Copper Ferrit (CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>). *Prosiding Pertemuan Ilmiah XXIX HFI Jateng & DIY: Yogyakarta*.