

Karakteristik Dielektrik Komposit Poly (Vinylidene Fluoride) PVDF/SiO₂ Pasir Vulkanik Kelud

Characteristics of Dielectric Composite Poly (Vinylidene Fluoride) PVDF/SiO₂ from Kelud Vulcanic Sands

Nur Mufida, Lydia Rohmawati*, Istiqomah, Ajeng Hefdea, Entang Wulanchayani, Woro Setyarsih
Jurusan Fisika FMIPA, Universitas Negeri Surabaya
Jln. Ketintang, Surabaya 60231

ABSTRAK

PVDF yang dipadukan dengan bahan keramik akan memberikan pengaruh terhadap nilai dielektrik dan loss dielektriknya. Penelitian ini bertujuan mendeskripsikan sifat dielektrik PVDF/SiO₂ dengan variasi penambahan massa SiO₂ yang proses pencampurannya menggunakan surfaktan silika Tetramethylammonium hidroksida (TMAH). SiO₂ disintesis dari pasir vulkanik Kelud menggunakan metode kopresipitasi dan dipanaskan pada suhu 800°C selama 17 jam. Selanjutnya SiO₂ dipadukan dengan PVDF yang ditambah TMAH dengan manipulasi komposisi SiO₂ 0 wt%, 1 wt%, 2 wt%, 3 wt%, 4 wt%, 5 wt%. Setelah itu dilakukan karakterisasi FTIR, SEM, dan LCR. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan silika memiliki fase kristalin (Trydimite 58.5%, Crystobalite 14.3%, dan Quartz 27.2%) dengan ukuran partikel 8.25 nm. Hasil FTIR menunjukkan fase- β muncul pada setiap komposisi komposit PVDF/SiO₂. Hasil SEM-EDX menunjukkan bahwa komposit PVDF/SiO₂ telah tercampur secara homogen. Pada uji LCR nilai dielektrik PVDF pada frekuensi 50 Hz sebesar 3.96x10⁴ F/m, SiO₂ sebesar 1.5x10⁴ F/m, komposit PVDF/SiO₂ sebesar 2.28x10⁴ F/m dan loss dielektrik sebesar 7,52 dengan komposisi SiO₂ 4 %wt.

Kata Kunci: bahan dielektrik, komposit PVDF/SiO₂, TMAH

ABSTRACT

PVDF which combined with ceramic materials will affect the dielectric value and dielectric loss. This study aims to describe the dielectric properties of PVDF / SiO₂ with additional mass variations of SiO₂ whose mixing process uses Tetramethylammonium hydroxide (TMAH) silica surfactant. SiO₂ was synthesized from Kelud volcanic sand using coprecipitation method and heated at 800°C for 17 hours. Furthermore, SiO₂ combined with PVDF was added by TMAH with manipulation of composition SiO₂ 0% by weight, 1% by weight, 2% by weight, 3% by weight, 4% by weight, 4% by weight, by 5% by weight. After that, the characterization of FTIR, SEM, and LCR was carried out. The XRD characterization results showed silica has a crystalline phase (Trydimite 58.5%, Crystobalite 14.3%, and Quartz 27.2%) with a particle size of 8.25 nm. FTIR results show that β -phases appear in every PVDF / SiO₂ composite composition. The SEM-EDX results show that the PVDF / SiO₂ composite has been homogeneously mixed. In the LCR test, the PVDF dielectric value at a frequency of 50 Hz is 3.96x10⁴ F / m, SiO₂ 1.5x10⁴ F / m, the composite PVDF / SiO₂ is 2.28x10⁴ F / m and 7.52 dielectric losses with a composition of 4% SiO₂ weight.

Key Words: Dielectric material, PVDF, PVDF/SiO₂, TMAH

PENDAHULUAN

Polyvinylidene fluoride (PVDF) adalah polimer yang bersifat konduktif karena memiliki sifat piezoelektrik. PVDF memiliki 4 fase yaitu fase α , fase β , fase γ dan fase δ (Ye Yun, *et al.*, 2011). Fase β memiliki sifat piezoelektrik paling baik yang bisa digunakan sebagai bahan dielektrik pada superkapasitor. PVDF sering digunakan sebagai bahan dielektrik dalam baterai ion litium karena konstanta dielektriknya yang cukup besar (Huang, *et al.*, 2014), dan dapat dijadikan sebagai elektroda superkapasitor yang dipadukan dengan karbon aktif (Fidiyanti YN, dkk., 2016). Beberapa penelitian terkait PVDF sebagai bahan dielektrik seperti dikompositkan dengan SiO₂ dan CaCu₃Ti₄O₁₂ (Katoch (2009), Sukron M dkk (2015), Thomas *et al*

(2013). Pada penelitian ini SiO₂ didapatkan dari pasir vulkanik gunung Kelud menggunakan metode kopresipitasi. Hadi S, dkk (2013) berhasil mendapatkan nano silika berukuran 58 nm dari material pasir Bancar menggunakan metode kopresipitasi. Begitu pula dengan Januar & Munasir (2013) dalam penelitiannya diperoleh nano silika berukuran 4,119-824 nm dari lumpur Sidoarjo. Pada penelitian sebelumnya oleh Katoch (2009), komposit PVDF/SiO₂ memiliki nilai dielektrik sebesar 32 F/m dengan loss dielektrik 7 pada komposisi 2 wt % SiO₂, dan 3,37x10⁻⁶ F/m dengan loss dielektrik 6,9 pada penambahan 2 wt % SiO₂ (Sukron, dkk., 2015). Namun morfologi komposit tersebut masih terdapat bagian yang mengalami aglomerasi karena proses mixing yang

*Alamat korespondensi:
lydiarohmawati@unesa.ac.id

menyebabkan ikatan silika belum terurai atau putus. Oleh karena itu ada proses komposit ditambahkan TMAH untuk memecah ikatan silika (Kosim M & Munasir, 2014). Berdasarkan penelitian tersebut maka dilakukan sintesis komposit PVDF/SiO₂ dengan variasi massa 1 wt% hingga 5 wt% SiO₂ dan dilakukan penambahan TMAH untuk meningkatkan nilai dielektrik dan menurunkan loss dielektrik PVDF/SiO₂ sehingga dapat digunakan sebagai bahan dielektrik pada superkapasitor secara maksimal.

METODE PENELITIAN

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain Gelas kimia 250 ml, 100 ml, 50 ml, 25 ml, gelas ukur, pipet, cawan porselin, mortar, kaca arloji, neraca digital, spatula, kamera digital dan furnace. Bahan yang digunakan dalam penelitian antara lain *Hydrochlorid Acid* (HCl) Smart Lab Indonesia, *Sodium Hidroksida* *Sodium Hidroksida* (NaOH) MERCK Germany, *Ammonium Chlorida* (NH₄Cl) MERCK Germany, *Tetramethylammonium hidroksida* (TMAH) MERCK Germany, Pasir Vulkanik Kelud, *Polyvinilydene Flouride* (PVDF) Sigma Aldrich Singapura, *N-Methyl-2-pyrrolidone* (NMP) Sigma Aldrich Singapura, Etanol Smart Lab Indonesia.

Dalam penelitian ini, sintesis nanosilika kristalin dari pasir vulkanik Kelud dengan metode kopresipitasi yang diawali proses leaching untuk menghilangkan unsur-unsur pengotor dalam bahan, pemurnian silika sampai diperoleh endapan putih, kemudian tahap kalsinasi untuk memperoleh silika kristalin. Pasir Vulkanik Kelud diayak dengan ayakan 250 mesh. Kemudian direndam dalam larutan HCl 2M selama 24 jam untuk menghilangkan pengotor-pengotor yang ada. Kemudian dicuci dengan aquades ±7 kali, dikeringkan, digerus dan diayak kembali. 10 gram serbuk pasir vulkanik Kelud hasil leaching dilarutkan dalam 60 ml larutan NaOH (7M) dan diaduk dengan magnetic stirrer pada temperatur 70°C selama 1 jam. Selanjutnya larutan tersebut ditambahkan aquades 250 ml dan disaring 15 dengan kertas saring 200 mesh hingga terbentuklah larutan natrium silikat. Setelah proses ini dilakukan kemudian dititrasi dengan HCl (2M) sampai mencapai pH 7 secara perlahan sambil diaduk

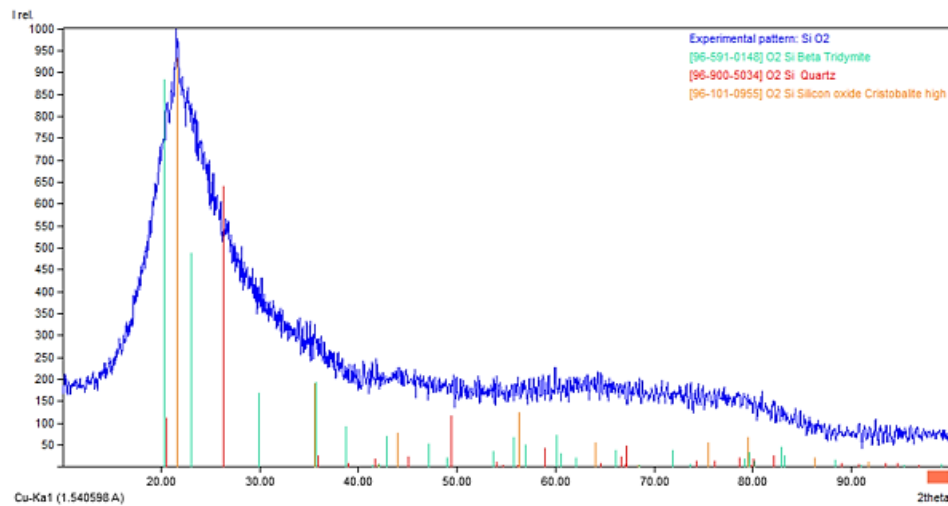
dengan magnetic stirrer hingga terbentuk endapan putih. Kemudian endapan putih tersebut dicuci dengan aquades dan dikeringkan dengan cara dikalsinasi pada suhu 100°C selama 10 jam, lalu dilakukan proses kalsinasi pada suhu 300°C dan 500°C selama 10 jam dan 800°C selama 17 jam (Januar A dan Munasir, 2013; Sukron M, dkk., 2015). Serbuk silika yang dihasilkan digerus dengan mortal lalu diuji FTIR untuk mengetahui gugus fungsi, XRD untuk mengetahui jenis fase kristalin dan ukuran partikel silika.

Proses preparasi □-PVDF yaitu dengan menggunakan metode infersi fase, komposisi serbuk 10 wt % PVDF, 84 wt % NMP, dan 6 wt % NH₄Cl dengan total massa 4 gram. Pada penelitian ini PVDF yang digunakan adalah PVDF Sigma Aldrich, N-Methyl-2-pyrrolidone (NMP) Sigma Aldrich, dan NH₄Cl Merck Germany.

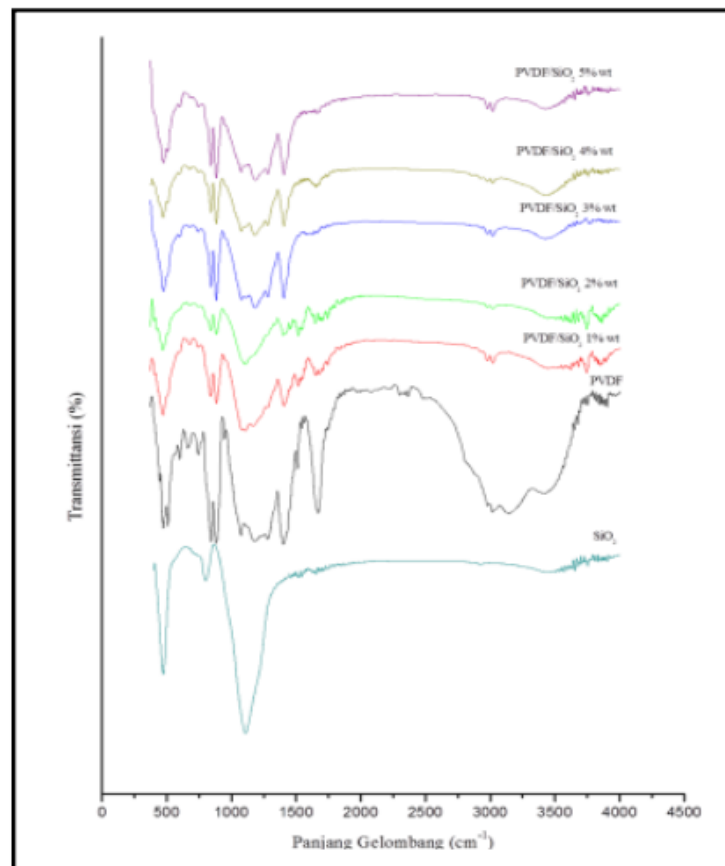
Pembuatan komposit PVDF/SiO₂ dilakukan dengan mencampurkan serbuk PVDF dan SiO₂ menggunakan perbandingan persen berat (wt %) dengan massa komposit 4 gram. Selanjutnya PVDF, SiO₂ maupun bahan pelarut seperti NMP dan NH₄Cl tersebut distirer pada suhu 40°C selama 30 menit. Setelah itu dicetak dalam kaca arloji dan direndam dengan campuran etanol dan aquades (50:50) selama 30 menit, lalu dicuci kembali dengan aquades dan dikalsinasi pada suhu 90°C selama 5 jam. Hasilnya dilakukan karakterisasi FTIR, SEM dan LCR.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Identifikasi fase kristal SiO₂ pasir vulkanik Kelud dengan kalsinasi 300°C, 500°C selama 10 jam dan 800°C selama 17 jam dilakukan dengan karakterisasi XRD yang hasilnya dianalisis menggunakan software match! (Gambar 1). Pola difraksi yang ditampilkan pada Gambar 1 menunjukkan 3 fasa kristalin SiO₂ yaitu *Beta Tridymite* sebesar 58.5% ; *Silicon Oxide Cristobalite high* 14.3% ; *Beta Quartz* 27.2%, dan puncak tertinggi pada 2θ=21.53 dengan intensitas 100% yang teridentifikasi fase *Silicon oxide Cristobalite high*. Analisa Rietveld dilakukan untuk mengetahui ukuran kristalin sampel. Dari hasil analisa didapatkan ukuran kristalin SiO₂ sebesar 8,25 nm.



Gambar 1. Hasil karakterisasi XRD SiO₂ pasir vulkanik Kelud



Gambar 2. Spektrum FTIR PVDF/SiO₂, PVDF dan SiO₂

Fase β telah terbentuk meskipun masih terdapat puncak yang mengindikasikan fase α pada sampel D, E dan F dengan bilangan gelombang 1182,4 cm⁻¹. Beberapa puncak tambahan pada 1335 cm⁻¹ terjadi *wagging* atau *twisting* ikatan CH₂ dan pada 3016,77 cm⁻¹ (A), 3020,63 cm⁻¹ (B, D, E) menunjukkan ikatan *symmetry stretching* CH₂, untuk bilangan gelombang 2978,19 cm⁻¹ (B, D, E, F), 2980,12 cm⁻¹ (C) menunjukkan ikatan

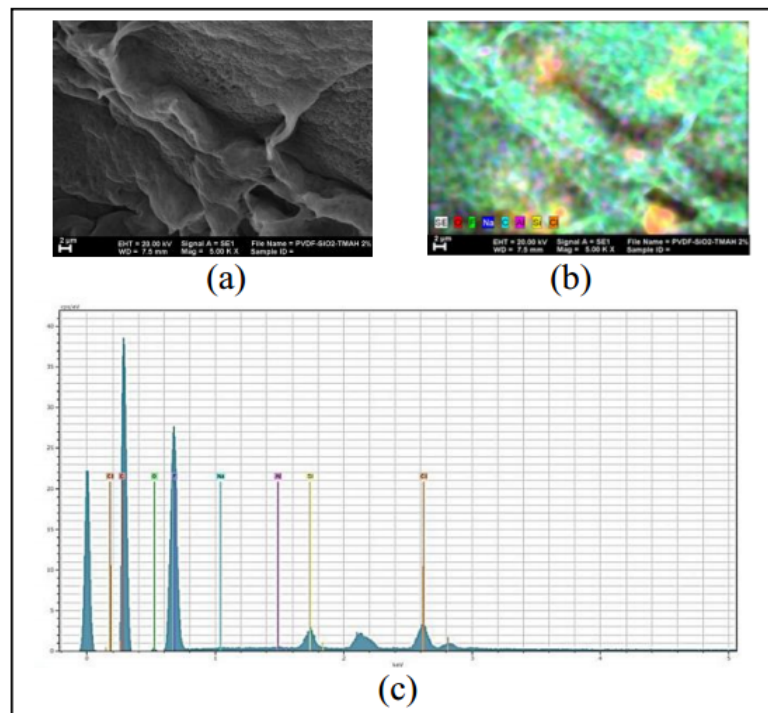
asymmetristretching CH₂, kemudian terjadi *wagging* CH₂, *rocking* CC, dan *wagging* CF₂ pada 1072.46 cm⁻¹ (A), 1080.17 cm⁻¹ (B), 1076.32 cm⁻¹ (D), dan 1074.39 cm⁻¹ (E, F). Bilangan gelombang 1105.25 cm⁻¹ (B), 1107.18 cm⁻¹ (C, E), 1111.03 cm⁻¹ (D), 1109.11 cm⁻¹ (F) terjadi ikatan Si-O-Si, sedangkan pada bilangan gelombang 659.68 cm⁻¹ (A), 675.11 cm⁻¹ (B), 678.97 cm⁻¹ (C, D, F), 677.04 cm⁻¹ (E) menunjukkan konfigurasi *head to head* dan *tail to tail* (Tabel 1).

Tabel 1. Analisis spektrum FTIR PVDF, SiO₂ dan PVDF/SiO₂

Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)	Group	Vibrasi	Fase	Referensi	Bilangan Gelombang Hasil Eksperimen						
					PVDF/SiO ₂ + TMAH						
					A	B	C	D	E	F	SiO ₂
445			□	1	443,64	-	424,35	-	-	-	-
468	CF ₂ dan SiO ₂	Bending dan wagging	□	2,3	-	468,72	466,79	474,5	470,65	474,5	472,58
509	CF ₂	Bending	□	2,3	509,22	-	-	-	507,3	507,3	-
531	CF ₂	Bending	□	2,3	-	-	-	-	-	-	-
600			□	1	599,88	594,11	-	597,95	597,95	599,88	-
612	CF ₂ , CCC	Bending CF ₂ dan getaran skeletal CCC	□	2,3	-	-	-	-	-	-	-
677		Konfigurasi head tohead dan tail to tail		4	659,68	675,11	678,97	678,97	677,04	678,97	-
745		In-plane bending or rocking	□	2,3	744,55	744,55	-	744,55	744,55	742,62	-
763	CF ₂ , CCC	In-plane bending or Rocking	□	2,3	-	-	-	-	-	-	-
840	CH ₂ , CF ₂	CH ₂ rocking dan CF ₂ asymmetric stretching	□	2,3	840,99	839,06	839,06	840,99	840,99	840,99	-
879	CC, CF ₂	CC rocking dan CF ₂ asymmetric stretching	□	2,3	883,43	883,43	881,5	883,43	883,43	881,5	-
973	CH ₂		□	2,3	-	-	-	-	-	-	-
1073	CC, CF ₂ , CH ₂	CCrocking, CF ₂ wagging, CH ₂ wagging	□	2,3	1072,46	1080,17	-	1076,32	1074,39	1074,39	-
1109	Si-O-Si	siloksan		5	-	1105,25	1107,18	1111,03	1107,18	1109,11	1109,11
1182	CF ₂ , CH ₂	Stretching CF ₂ dan konfigurasi tail	□	2,3	1182,4	-	-	1182,4	1180,47	1182,4	-
1211	CF ₂ , CH ₂	CC rocking, CH ₂ wagging	□	2,3	-	-	-	-	-	-	-
1274	CC, CF ₂ , CCC	stretchin g CF ₂ , CC dan bending CCC	□	2,3	1278,85	1276,92	-	1280,78	1278,85	1280,78	-
1335	CH ₂	Out of bending		6	-	-	1336,71	-	-	-	-
1401	CH ₂ , CC	(wagging or twisting)		2,3	-	-	-	-	-	-	-
1429	C2	Wagging CH ₂ dan rocking CC	□	2,3	1400,37	1408,08	1398,44	1404,22	1404,22	1404,22	-
1453	CH ₂	Bending CH ₂	□	6,7	-	-	-	-	-	-	-

Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)	Group	Vibrasi	Fase	Referensi	Bilangan Gelombang Hasil Eksperimen					
					PVDF/SiO ₂ + TMAH					
					A	B	C	D	E	F
2978	CH ₂	In plane bending or scissoring		7,8	-	-	1656,3	-	-	-
3016	CH ₂	Asymmetri		7,8	-	2978,19	2980,12	2978,19	2978,19	2978,19
		Stretching Symmetri			3016,77	3020,63	3022,55	3020,63	3020,63	3018,7
		Stretching								-

Keterangan: Sampel PVDF/SiO₂ 0 %wt (A), Sampel PVDF/SiO₂ 1 %wt (B), Sampel PVDF/SiO₂ 2 %wt (C), Sampel PVDF/SiO₂ 3 %wt (D), Sampel PVDF/SiO₂ 4 %wt (E), Sampel PVDF/SiO₂ 5 %wt (F). Referensi: (1) Bharti, *et al.*, 1997; (2) Kobayashi, *et al.*, 1975; (3) Bachmann & Koenig JL, 1981; (4) Hilczer & Kulek, 1998; (5) Januar dan Munasir, 2013; (6) Silverstein & Webster, 2014; (7) Garton, 1992; (8) Betz, *et al.*, 1994



Gambar 3. Morfologi SEM PVDF/SiO₂ 2 %wt dengan TMAH (a) , SEM-EDX PVDF/SiO₂ 2 %wt dengan TMAH (b), dan grafik unsur komposit SEM PVDF/SiO₂ 2 %wt dengan TMAH

Karakterisasi SEM-EDX (Gambar 3) dilakukan dengan perbesaran 5000X. morfologi PVDF/2 wt % SiO₂ menunjukkan tidak ada aglomerasi yang terjadi. Hal ini menunjukkan bahwa ikatan antara PVDF dan SiO₂ telah terbentuk. Selain itu dengan adanya TMAH yang ditambahkan pada komposit, partikel silika telah didistribusikan secara merata sehingga ikatan silika lebih cepat terpecah dan berikatan dengan PVDF.

Tabel 2. Komposisi unsur hasil analisis EDX

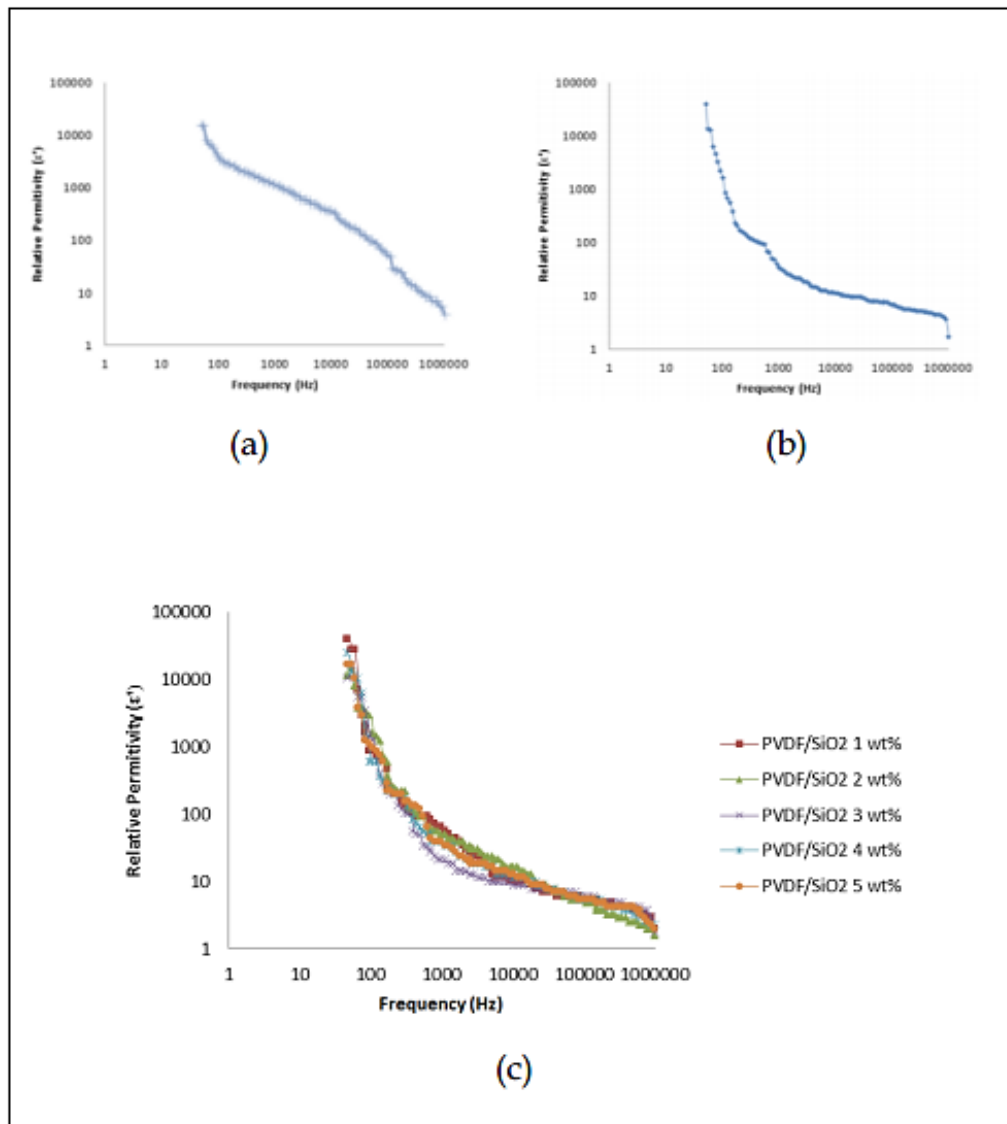
No	Jenis Unsur	Kandungan unsur (%)
1	Karbon (C)	29,81
2	Oksigen (O)	0,10
3	Fluor (F)	64,93
4	Silikon (Si)	1,43
5	Klorida (Cl)	2,99
6	Natrium (Na)	0,63

Gambar 4 menunjukkan bahwa seiring bertambahnya frekuensi maka nilai permitivitas sampel semakin menurun. Nilai permitivitas dielektrik tertinggi terdapat komposit PVDF/1 wt% SiO₂. Hal ini menunjukkan bahwa komposit PVDF/SiO₂ baik digunakan untuk aplikasi bahan dielektrik, ketika bahan dielektrik diberi tegangan maka dipol listrik dalam bahan akan terketub sehingga menimbulkan medan listrik internal yang akan menurunkan medan listrik total dengan jumlah muatan yang tetap sehingga kapasitansi meningkat.

Dielektrik bahan PVDF/SiO₂ dapat bekerja dengan baik pada frekuensi 50 Hz sampai 1000 Hz, kemudian turun dengan bertambah besarnya frekuensi mengakibatkan energi panas meningkat sehingga muatan listrik akan dapat menembus

bahan dielektrik. Berdasarkan Gambar 4 (c) nilai loss dielektrik menurun dengan meningkatnya frekuensi hal ini sama seperti dengan penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Katoch (2009). Nilai loss dielektrik cenderung menurun seiring bertambahnya komposisi SiO_2 dalam komposit, hal ini menunjukkan bahwa peran SiO_2 sangat penting untuk memperbaiki sifat thermal dari komposit PVDF/ SiO_2 , karena ketika loss dielektrik kecil

maka bahan tersebut tahan akan panas dan arus listrik yang tembus bahan dielektrik semakin kecil. Loss dielectric terjadi akibat gesekan antar molekul dalam bahan dielektrik dan timbul panas sehingga muatan listrik mudah menembus bahan tersebut (Abdul Syakur, 2011). Untuk Lebih jelasnya berikut adalah nilai dielektrik dan loss dielektrik untuk setiap komposisi pada Tabel 3.



Gambar 4. Permittivitas Relatif SiO_2 Pasir Vulkanik Kelud (a), PVDF (b), dan komposit PVDF/ SiO_2 (c)

Tabel 3. Nilai dielektrik dan loss dielektrik

Sampel	Permittivitas relatif (F/m)	Loss dielektrik
PVDF	$3,96 \times 10^4$	9,97
PVDF/ SiO_2 1 %wt	$4,09 \times 10^4$	9,61
PVDF/ SiO_2 2 %wt	$1,20 \times 10^4$	9,05
PVDF/ SiO_2 3 %wt	$1,06 \times 10^4$	8,19
PVDF/ SiO_2 4 %wt	$2,28 \times 10^4$	7,52
PVDF/ SiO_2 5 %wt	$1,58 \times 10^4$	11,04
SiO_2	$1,50 \times 10^4$	4,2

SIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa penambahan massa SiO₂ dalam komposit PVDF/SiO₂ berpengaruh pada nilai dielektrik dan loss dielektriknya. Komposit PVDF/SiO₂ dengan TMAH memiliki komposisi ideal pada penambahan SiO₂ sebesar 4 wt%, dimana nilai dielektriknya sebesar 2.28x10⁴ F/m dan memiliki loss terendah yaitu sebesar 7,52.

DAFTAR PUSTAKA

- Bachmann MA and Koenig JL, 1981. Vibrational analysis of phase III of poly (vinylidene fluoride). *J. Chem. Phys.* 74: 5896.
- Betz N, Le Moel A, Balanzat E, Ramillon JM, Lamotte J, Gallas JP, Jaskierowicz GA, 1994. FTIR Study of PVDF Irradiated by Means of Swift Heavy Ions. *J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys.* 32: 1493-1502.
- Bharti V, Kaura T, Nath R, 1997. Ferroelectric Hysteresis in Simultaneously Stretched and Corona-Poled PVDF Films. *IEEE Trans. Dielectrics Elec. Insulation.* 4 (6): 738-741.
- Fidiyanti YN, Rohmawati L, Putri NP, Setyarsih W, 2016. Analisis Nilai Kapasitansi Spesifik pada Elektroda Karbon Aktif/PVDF. *Sains & Matematika*, 4 (2): 55-58.
- Garton A, 1992. Infrared Spectroscopy of Polymer Blends, Composites and Surfaces. Hancer Editorial: Munich.
- Hadi S, Munasir, Triwikantoro, 2011. Sintesis Silika Berbasis Pasir Alam Bancar Menggunakan Metode Kopresipitasi. *Jurnal Fisika dan Aplikasinya*, 7 (2).
- Hilczner B, Kulek J, 1998 The Effect of Dielectric Heterogeneity on Pyroelectric Response of PVDF. *IEEE Trans. Dielectrics Elec. Insulation.* 5 (1): 45-50.
- Huang X, Zhang Xi, Jiang H, 2014. Energy Storage Via Polyvinylidene Fluoride Dielectric on the Counter electrode of Dye-Sensitized solar cells. *Journal of power source Elsevier* 248: 434-438
- Januar A dan Munasir, 2013. Pengaruh pH Akhir Larutan pada Sintesis Nanosilika dari Bahan LuSi dengan Metode Kopresipitasi. *Jurnal Inovasi Fisika Indonesia*, 2(3): 7 – 10.
- Katoch A, 2009. Stuctural and Dielectric Investigation of Nano Dispersed Poly (Vinylidene Fluoride) (PVDF) Composites. School of Physics and Materials science: Thapar University, Patiala, (Punjab).
- Koenig J, 2002. FTIR imaging of polymer dissolution. *Adv Mater*, 14 (6): 457–60.
- Kosim M dan Munasir, 2014. Studi Pengaruh Penambahan SiO₂ Terhadap Porositas □Al₂O₃. *Jurnal Inovasi Fisika*, 3(3).
- Silverstein RM, Webster FX, 2014. Spectrometric Identification of Organic Compounds. John Wiley and Sons: New York.
- Sukron M, Setyarsih W, Rohmawati L, 2015. Studi Dielektrik Polyvinilidene Fluoride (PVDF)/SiO₂ dari Lumpur Sidoarjo. *Jurnal Inovasi Fisika Indonesia*, 04 (01): 19-22.
- Syakur A, Tumiran, Berahim H, Rochmadi, 2011. Pengujian Karakteristik Limbah Pasir PLTP Dieng Sebagai Bahan Pengisi Isolator Resin Epoksi Silane. *Jurnal Rekayasa Elektrika*, 9(4): 177-182.
- Thomas P, Satapathy S, Dwarakananth K, Varma Kbr, 2013. Dielectric properties of Poly (vinylidene fluoride)/CaCu₃Ti₄O₁₂ Nanocrystal Composite Thick Films. *eXPRESS Polymer Letters*, 4(10): 632–643.
- Ye Yun, Jiang Y, Wu Z, Zeng H, 2011. Phase Transition of Poly (vinylidene fluoride) Under Electric Field. *Integrated Ferroelectrics*, 80 (1): 245-251.