

PENGARUH WAKTU REFLUKS TERHADAP KONDUKTIVITAS LISTRIK ZEOLIT SINTETIK DARI ABU DASAR

Rika Juniarti Waleza, Afdhal Muttaqin

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Andalas, Padang

Kampus Unand Limau Manis, Pauh, Padang 25163

email: rikajuniartiwaleza23@yahoo.com

ABSTRAK

Telah dilakukan sintesis zeolit dari limbah abu dasar batubara dengan metode refluks menggunakan NaOH sebagai aktivator. Variasi waktu refluks yang dilakukan adalah 12, 24 dan 36 jam dengan konsentrasi molar NaOH 3M dan 5M. Pengujian yang dilakukan meliputi penentuan struktur kristal menggunakan X-ray Diffraction (XRD), morfologi permukaan menggunakan Scanning Electron Microscope (SEM) dan penentuan konduktivitas dengan LCR Meter. Hasil XRD memperlihatkan bahwa zeolit yang dihasilkan merupakan tipe Na-X, Na-P dan Hidroksisodalit. Penambahan waktu refluks menjadikan zeolit lebih seragam yang dilihat dari puncak-puncak pada kerakterisasi XRD dan morfologi permukaan dari hasil SEM. Pada waktu refluks 36 jam, sampel dengan konsentrasi 5M menunjukkan ukuran partikel 0,049 μm . Hasil LCR Meter menunjukkan nilai konduktivitas sampel 0,765 x 10⁻⁶ S/cm hingga 2,499 x 10⁻⁶ S/cm, dimana konduktivitas ini menunjukkan bahwa zeolit merupakan bahan semikonduktor.

Kata kunci : abu dasar, zeolit, metode refluks, variasi molar, konduktivitas.

ABSTRACT

The synthesis of zeolites from coal bottom ash waste with NaOH as activator, by using reflux method has been performed. Reflux time was varied from 12, 24 and 36 hours with the NaOH molar concentration of 3 and 5M. The characteristics of sample are observed from crystal structure through XRD, surface morphology through SEM and conductivity through LCR Meter observations. The results of XRD showed that the type of zeolite is Na-X, Na-P, and Hidroksisodalite. The increase of reflux time produces zeolits which are more uniform that can be observed from XRD and SEM result. The result of SEM showed that the sample with reflux time of 36 hours and concentration of 5M has more regular surface morphology and smaller particle size (0,049 μm). Conductivity obtained from the LCR Meter showed that its value varied from 0.765 x10⁻⁶ S / cm to 2.499 x 10⁻⁶ S /cm, indicating that zeolite is a semiconductor material.

Keyword: coal bottom ash, zeolit, reflux time, conductivity.

I. PENDAHULUAN

Material seperti zeolit, silika dan karbon aktif sebagai nanoporous material, mempunyai struktur berpori yang kompleks dan ukuran yang heterogen (Barrer, 1978). Berbagai aplikasi telah dikembangkan sejak diketahuinya bahwa material berpori mampu memiliki sifat listrik yang lebih baik (Ertugrul dan Alime, 2007). Zeolit sebagai material berpori terdiri dari senyawa alumina silikat terhidrasi dengan struktur tetrahedral (Si dan Al) dan dikelilingi oleh atom O dalam ikatan tiga dimensi (Hay, 1966). Mineral zeolit yang paling umum dijumpai adalah (Na,K)₂O.Al₂O₃.10SiO₂.8H₂O (Dartt dan Davis, 1994). Perbandingan antara atom Si dan Al yang bervariasi akan menghasilkan spesies zeolit yang terdapat di alam. Penggunaan zeolit pada umumnya didasarkan pada sifat-sifat kimia dan fisika zeolit, seperti penyerap, penukar kation, dan katalis (Barrer, 1982).

Zeolit terdiri atas zeolit alam dan zeolit sintetik. Zeolit alam merupakan zeolit yang terbentuk karena adanya proses kimia dan fisika yang kompleks dari batuan yang mengalami berbagai macam perubahan alam. Zeolit alam terdapat beberapa kelemahan diantaranya mengandung banyak pengotor seperti Na, K, Ca, Mg, dan Fe serta kristalinitasnya kurang baik (Dartt dan Davis, 1994). Zeolit sintetik berasal dari limbah pembakaran batubara. Limbah pembakaran batubara ini menghasilkan abu dasar dan abu layang (Tunjungsari, 2008) dalam jumlah yang cukup besar.

Hasil analisis kandungan mineral menunjukkan bahwa abu dasar mengandung oksida-oksida logam termasuk logam berat dalam jumlah kecil yang dapat bersifat sebagai racun

(Yanti, 2009). Oksida utama dari abu dasar batubara ini yaitu silika (SiO_2), alumina (Al_2O_3) dan besi (Fe_2O_3). Dari komponen silika dan alumina yang terdapat pada abu dasar, memungkinkan abu dasar dapat disintesis menjadi zeolit (Tunjungsari, 2008). Dengan dimanfaatkannya limbah abu dasar sebagai pembuatan zeolit dapat mengurangi dampak bahaya dari limbah yang menumpuk.

Sintesis zeolit berbahan sisa pembakaran batubara menghasilkan berbagai jenis zeolit yang dapat dikembangkan pada berbagai aplikasi yang berbeda. Jenis zeolit yang didapat dari proses sintesis sangat bergantung pada metode yang digunakan serta aktivator dan media kristalinitas, selain itu juga ditentukan oleh perbandingan Si:Al yang terkandung dalam material dasar yang digunakan (Ahkam, 2011).

Sintesis zeolit berbahan abu layang melalui proses alkali hidrothermal dengan berbagai keadaan yang berbeda menghasilkan Zeolit X dan Zeolit P (Jumaeri, dkk., 2007). Pemanfaatan abu dasar sebagai bahan utama penyusun zeolit melalui proses yang sama menghasilkan zeolit dengan tipe yang berbeda (Sutarno dan Arif, 2009). Disisi lain, pembuatan zeolit berbahan abu layang dengan metode refluks ternyata menghasilkan jenis zeolit yang berbeda dengan proses alkali hidrothermal (Sunardi, dkk., 2007). Penelitian lain mengenai pembuatan zeolit dengan aktivator HCL pada variasi waktu 5,6,7,8 dan 9 jam menghasilkan Zeolit Faujasit, Zeolit X, Zeolit Y, dan Zeolit Na (Wardani, 2013).

Refluks merupakan metode pemanasan berulang pada proses kimia. Metode refluks mampu mengubah fasa mineral alumina dan silika menjadi zeolit dimana semakin lama waktu refluks menyebabkan semakin banyak jenis zeolit yang terbentuk. Penggunaan larutan NaOH sebagai aktivator dalam pelarutan garam silika dan alumina akan menghasilkan zeolit dengan tipe yang berbeda (Sunardi, dkk., 2007). Sunardi dkk. (2007) menggunakan abu layang dan waktu refluks yang interval waktunya tidak seragam (12, 24 dan 72 jam) sehingga sulit untuk mengamati pengaruh waktu refluks terhadap proses zeolitisasi. Oleh karena itu di dalam penelitian ini digunakan waktu refluks dengan interval yang seragam (12, 24 dan 36 jam). Selain menggunakan NaOH 3M sebagaimana Sunardi dkk., juga digunakan NaOH 5M. Semakin tinggi molaritas yang divariasikan diharapkan dapat meningkatkan nilai tukar kation dan menghasilkan zeolit dengan konduktivitas yang baik (Ertugrul dan Alime, 2007).

II. METODE

2.1 Sintesis Zeolit

Sebanyak 37,5 g abu layang dicampur dengan 300 mL larutan NaOH 3M dan 5M. Campuran tersebut diaduk dalam magnetic stirer selama 24 jam pada suhu kamar. Setelah 24 jam, campuran tersebut dipindahkan kedalam tabung labu 500 mL untuk proses refluks dan suhunya dinaikkan menjadi 100°C dengan variasi waktu 12, 24 dan 36 jam pada masing-masing labu tabung. Endapan yang dihasilkan dicuci dengan akuades hingga mencapai pH netral dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 105°C .

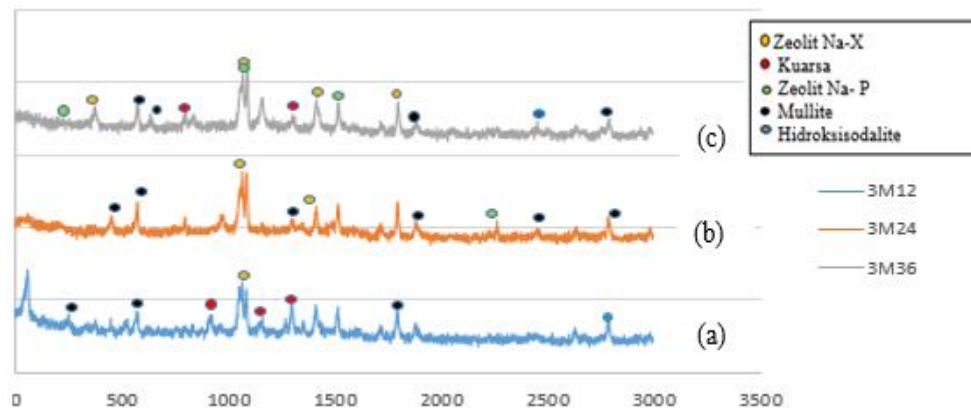
2.2 Karakterisasi dan Pengukuran konduktivitas Listrik

Untuk mengetahui kristalinitas, komposisi dan jenis zeolit yang terbentuk akan digunakan XRD, dan untuk mengetahui struktur permukaan digunakan SEM. Sifat listrik diamati melalui nilai konduktivitasnya dengan LCR Meter. Sebelum dilakukan karakterisasi sifat listrik, dilakukan proses kompaksi setelah diperoleh zeolit sintesis dalam bentuk serbuk. Kompaksi tersebut dilakukan berdasarkan pada komposisi yang telah ditentukan sehingga hasil akhir yang diperoleh berupa tablet tipis dengan diameter tertentu. Sampel diukur resistansinya dengan cara menjepitnya agar nilai resistansi terbaca akurat di LCR Meter. Pengukuran konduktivitas dilakukan dengan cara memberikan tegangan pada bahan. Elektron bebas akan mengalir dalam bahan apabila ada perbedaan potensial diantara dua titik bahan. Elektron-elektron dalam bahan yang memiliki beda potensial mengalir dari potensial yang lebih rendah ke potensial yang lebih tinggi sehingga akan menimbulkan arus.

III. HASIL DAN DISKUSI

3.1 Karakterisasi XRD

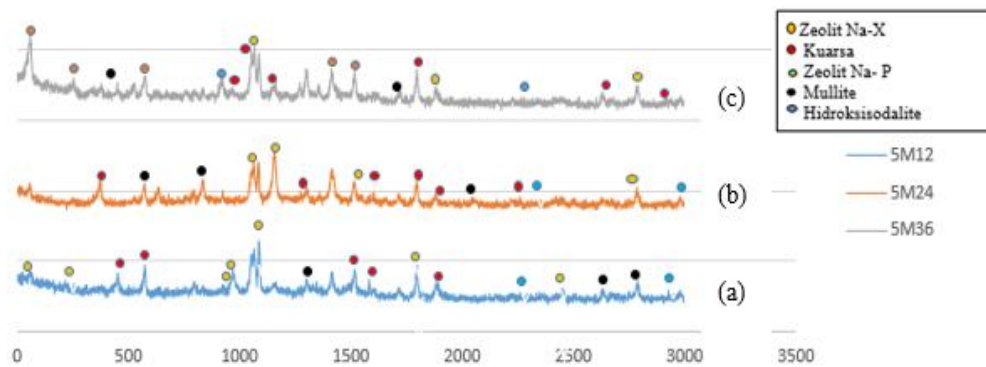
Gambar 1 merupakan hasil dari perlakuan refluks dengan konsentrasi kemolaran 3M pada waktu 12, 24 dan 36 jam. Dari Gambar 1 terlihat lama waktu refluks mempengaruhi jenis zeolit yang terbentuk. Intensitas tertinggi dari difraktogram yang dihasilkan ini memiliki kemiripan, yaitu muncul pada sudut 2θ yang hampir sama, yang berada pada sudut $2\theta = 26.706$. Hasil difraktogram ini sesuai dengan puncak karakteristik dari standar JCPDS nomor 38-0237 yang berupa pola dari kristal Zeolit Na-X. Dengan kata lain, hasil utama dari metode refluks dengan aktivator NaOH 3M adalah Zeolit Na-X. Zeolit Na-X adalah zeolit tipe faujasit dengan kerangka utama berbentuk kubik yang memiliki rasio Si:Al kecil dari dua. Zeolit tipe ini sangat baik sebagai penukar kation. Dari difraktogram pada Gambar 1 dapat dilihat beberapa puncak yang merupakan puncak dari mineral Kuarsa, Mullite, Hidroksisodalite dan Zeolit Na-P. Dari proses yang dilakukan dengan menggunakan variasi waktu hingga 36 jam ternyata belum mampu mereduksi semua mineral kuarsa dan mullit menjadi zeolit. Hal ini mengakibatkan kristalinitas zeolit tidak begitu baik yang terlihat dari intensitas puncak utama yang tidak terlalu tinggi. Adanya fase hidroksisodalite menunjukkan bahwa proses pembentukan zeolit belum berjalan secara maksimal. Dilihat dari senyawanya, hidroksisodalite dapat dibentuk menjadi zeolit namun secara struktur tidak memiliki pori sebagaimana ciri khas dari zeolit.



Gambar 1 Grafik karakterisasi XRD dengan metode refluks pada (a) metode refluks konsentrasi NaOH 3M selama 12 jam (b) metode refluks konsentrasi NaOH 3M selama 24 jam (c) metode refluks konsentrasi NaOH 3M selama 36 jam.

Gambar 2 merupakan hasil sintesis zeolit pada variasi waktu refluks 12, 24 dan 36 jam dengan konsentrasi NaOH 5M. Hasil ini tidak jauh berbeda dari hasil refluks dengan variabel waktu yang sama dengan aktivator NaOH 3M sebagaimana Gambar 1. Zeolit utama yang dihasilkan berupa Zeolit Na-X dengan hasil sampingan berupa Kuarsa, Mullit, Hidroksisodalit dan Zeolit Na-P. Gambar 1 dan 2 menunjukkan bahwa konsentrasi NaOH sebagai aktivator tidak menghasilkan tipe zeolit yang berbeda.

Dari difraktogram pada Gambar 2 dapat dilihat perbedaan intensitas puncak dari mineral kuarsa dan mullite. Pada waktu 12 jam terlihat puncak kuarsa dan mullite yang masih dominan. Seiring dengan bertambahnya waktu, pada waktu refluks 24 jam terlihat puncak kuarsa dan mullite berkurang dibandingkan waktu 12 jam. Akan tetapi, pada waktu 36 jam puncak mullite yang muncul bertambah sedangkan puncak kuarsa berkurang. Semakin besar konsentrasi NaOH yang digunakan akan semakin banyak ion Na^+ yang bereaksi dengan SiO_2 (Kuarsa) membentuk Zeolit Na-X. Hal ini yang menjadikan konsentrasi kuarsa menjadi menurun karena sebagian telah berikatan dengan ion Na^+ yang berasal dari NaOH. Selain itu, masih adanya kuarsa dalam hasil sintesis karena kuarsa merupakan mineral yang stabil sehingga sulit larut dengan sempurna dalam larutan NaOH (Lin dan Hsi, 2005). Konsentrasi kuarsa pada hasil akhir setelah refluks menunjukkan bahwa konsentrasi NaOH yang digunakan masih kurang.



Gambar 2 Grafik karakterisasi XRD dengan metode refluks pada (a) metode refluks konsentrasi NaOH 5M selama 12 jam (b) metode refluks konsentrasi NaOH 5M selama 24 jam (c) metode refluks konsentrasi NaOH 5M selama 36 jam.

3.2 Karakterisasi SEM

Sintesis zeolit dengan bahan dasar abu dasar batubara dengan media kristalisasi yang berbeda memberikan perubahan bentuk permukaan setelah diberikan perlakuan hingga menjadi zeolit. Hasil karakterisasi SEM dari abu dasar hingga menjadi zeolit dapat dilihat pada Tabel 1. Pengaruh pemberian aktivator NaOH dengan variasi waktu refluks menyebabkan perubahan ukuran serta bentuk permukaan dan homogenitas setiap sampel yang dapat dilihat pada Tabel 1. Sebagaimana hasil XRD yang memperlihatkan komposisi yang berbeda, hasil foto SEM permukaan menunjukkan adanya pengaruh pemberian aktivator NaOH dengan variasi waktu refluks terhadap homogenitas dan ukuran partikel. Secara umum terlihat bahwa sampel NaOH 5M dengan waktu refluks 36 jam memiliki ukuran partikel yang lebih seragam dengan sebaran lebih merata. Sampel lainnya, seperti sampel konsentrasi 3M dengan waktu refluks selama 12 jam masih terlihat adanya bongkahan (partikel dengan ukuran lebih besar) dengan sebaran yang tidak merata.

Jika dibandingkan dengan bentuk permukaan dari abu dasar yang permukaannya berbentuk bola dengan ukuran partikel yang tidak merata, terlihat bahwa proses yang diberikan pada abu dasar telah merubah bentuk permukaan mullit dan kuarsa yang berbentuk bola menjadi bentuk lain yang lebih mengarah pada bentuk kotak (jarum). Perubahan bentuk permukaan ini menunjukkan bahwa proses refluks memberikan pengaruh yang membawa pada perubahan morfologi permukaan zeolit. Dari foto karakterisasi SEM pada Tabel 1 bentuk struktur lain yang berasal dari zeolit Na-P maupun hidroksisodalit atau kuarsa tidak begitu dominan dan tidak dapat dibedakan sebagaimana yang diperlihatkan dari hasil XRD dari puncak-puncak sekunder yang tidak dominan. Dilihat dari ukuran partikel zeolit sintesis terbentuk, sampel dengan konsentrasi molar NaOH 5M dan waktu refluks 36 jam memiliki ukuran yang paling kecil dibandingkan yang lain. Dari hal diatas dapat disimpulkan bahwa konsentrasi aktivator NaOH yang lebih tinggi menjadikan zeolit lebih homogen dan lebih kristalin serta memiliki ukuran partikel yang lebih kecil.

Tabel 1 Ukuran partikel dan bentuk morfologi permukaan zeolit menggunakan karakterisasi SEM dengan pembesaran 40.000 X

No	Konsetrasi Kemolaran	Waktu Refluks (Jam)	Sampel	Ukuran (μm)	Bentuk Morfologi Permukaan
1	3M	12	3M 12	0,132-0,970	
2	3M	24	3M 24	0,053-0,075	
3	3M	36	3M 36	0,107-0,358	
4	5M	12	5M 12	0,030-1,089	
5	5M	24	5M 24	0,053-0,938	
6	5M	36	5M 36	0,049-0,292	

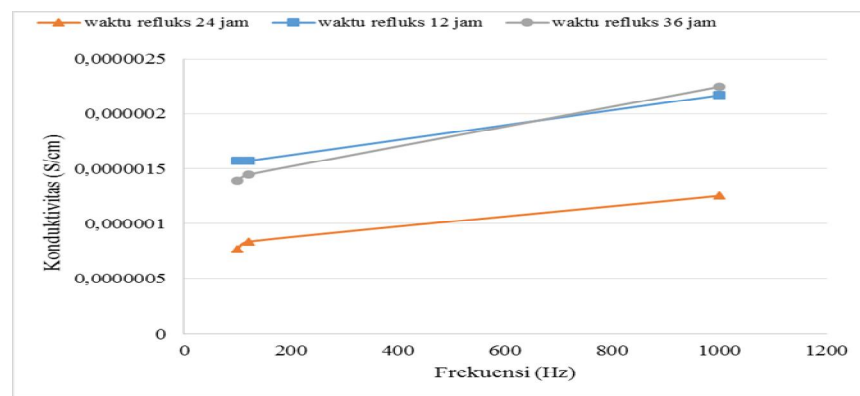
3.3 Pengukuran Konduktivitas Listrik

Tabel 2 menunjukkan nilai konduktivitas yang diperoleh berkisar $0,765 \times 10^{-6}$ S/cm hingga $2,499 \times 10^{-6}$ S/cm dimana nilai ini termasuk pada rentang nilai bahan semikonduktor. Secara keseluruhan, sampel dengan konsentrasi NaOH 5M dan waktu refluks selama 36 jam memiliki nilai konduktivitas yang lebih tinggi dibandingkan sampel yang lainnya. Konduktivitas listrik zeolit sintetik dengan nilai tertinggi adalah $2,499 \times 10^{-6}$ S/cm pada frekuensi 1000 Hz.

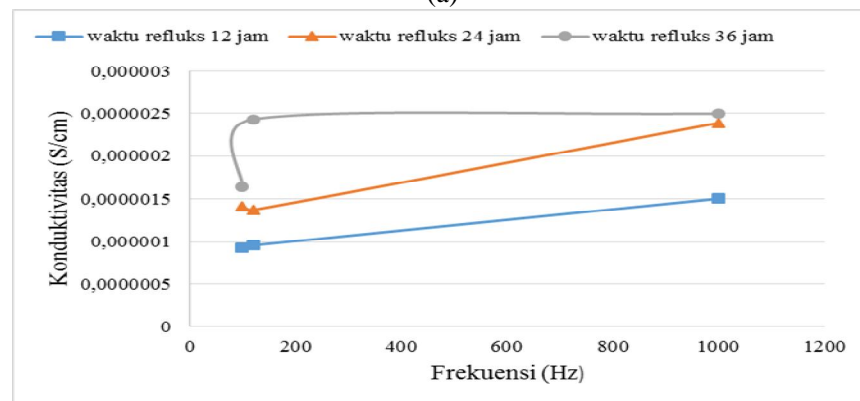
Tabel 2 Hasil pengukuran konduktivitas listrik sampel menggunakan LCR Meter

Frekuensi (Hz)	Konduktivitas (10^{-6} S/cm)					
	3M 12	5M 12	3M 24	5M 24	3M 36	5M 36
100	1,572	0,927	0,765	1,417	1,392	1,677
120	1,573	0,958	0,837	1,372	1,447	2,429
1000	2,171	1,503	1,251	2,386	2,247	2,499

Jika dilihat dari segi kristalinitas, semakin tinggi derajat kristalinitas sampel, akan mengakibatkan naiknya nilai konduktivitas (Susmita, 2012). Intensitas utama semua sampel berasal dari zeolit Na-X yang merupakan tipe zeolit dengan rasio Si/Al kecil dari dua. Hal ini ditunjukkan dengan nilai konduktivitas yang berada pada rentang yang sama. Sampel dengan konsentrasi 5M pada waktu refluks 36 jam merupakan zeolit sintetis dengan tingkat kristalinitas yang baik yang terlihat pada intensitas puncak XRD tertinggi dibandingkan sampel lainnya (Gambar 1 dan 2). Sampel ini juga memiliki bentuk permukaan yang lebih homogen dan ukuran partikel yang relatif lebih kecil dibandingkan sampel lainnya. Dengan demikian, perbedaan konduktivitas disebabkan oleh homogenitas serta tingkat kristalinitas masing-masing sampel sebagaimana tergambar pada hasil foto SEM (Tabel 1).



(a)



(b)

Gambar 3 Pengaruh frekuensi terhadap konduktivitas untuk waktu yang bervariasi (a) untuk konsentrasi NaOH 3M (b) untuk konsentrasi NaOH 5M

IV. KESIMPULAN

Penelitian ini memperlihatkan bahwa waktu refluks dan konsentrasi aktivator (NaOH) mempengaruhi kristalinitas dan homogenitas zeolit yang terbentuk. Morfologi dan kristalinitas yang terbaik teramati pada waktu refluks 36 jam dengan konsentrasi molar 5M. Dari penelitian ini juga teramati bahwa untuk konsentrasi aktivator yang kecil (3M), waktu refluks yang lebih

kecil (12 jam), menghasilkan zeolit yang lebih baik dari waktu refluks yang lebih lama (36 jam). Pembuatan zeolit dengan variasi waktu refluks 12, 24 dan 36 jam menghasilkan zeolit dengan tipe Na-X, Na-P dan masih terdapatnya fase hidroksisodalit. Selain mempengaruhi kristalinitas dan homogenitas, waktu refluks dan konsentrasi aktivator juga mempengaruhi konduktivitas. Nilai konduktivitas zeolit tertinggi pada waktu refluks 12 jam dengan menggunakan aktivator NaOH 3M, sedangkan dengan menggunakan aktivator NaOH 5M nilai konduktivitasnya tertinggi pada waktu refluks 36 jam. Zeolit yang dihasilkan dalam penelitian ini termasuk kedalam bahan semikonduktor dengan nilai konduktivitas $0,765 \times 10^{-6}$ S/cm hingga $2,499 \times 10^{-6}$ S/cm.

DAFTAR PUSTAKA

- Ahkam, M., 2011, Sintesis dan karakterisasi membran Nanozeolit Y untuk aplikasi Pemisahan Gas Methanol- Etanol, skripsi, FMIPA, UI.
- Barrer, R.M., 1978, Hidrotermal Chemistry of Zeolites, Academic press, London.
- Barrer, R.M., 1982, Zeolite and Clay Mineral As Sorbents and Mollecular Siens, Academic Press, London.
- Dartt, C.B. dan Davis M.E., 1994, Application of Zeolit of Fine Chemical Syhthesis, Catal 19, 151-186.
- Ertugrul dan Alime, 2007, Dielectric Behavior Of the Catalyst Zeolite Na-Y, Turkis Journal of Chemistry, Tubitak, hal 523-530.
- Hay, R.L., 1966, Zeolites and Zeolitic Reactions In Sedimentary Rocks, Dept. Geology and Geophysics, University of Califonia, Berkeley, California.
- Jumaeri, W., Astuti dan Lestari, W.T.P., 2007, Preparasi dan Karakterisasi zeolit dari Abu Layang Batubara secara Alkali Hidrotermal, Reaktor, Vol. 11 No.1, hal. 18-44 Jurusan Kimia, FMIPA Unnes.
- Lin, C.F. dan Hsi H.C., 1995, Resource recovery of Waste Fly Ash, Syntesis of Zeolit - Like Materials, Enviromental Sciences Technology Vol. 29, 1109-1117.
- Ojha, K., Narayan, C.P., dan Asmar, N.S., 2004, Zeolit from fly ash, Synthesis and charaterization, chemical Engineering Journal 112, 109- 115.
- Querol, X., 1997, A Fast Method for recycling Fly ash , Microwave Assisted zeolite synthesis, Vol 31 No. 89, Eviron Sci Technol.
- Sunardi, Taufiqur R., Edi M. dan Rini R., 2007, Pengaruh waktu Refluks dengan NaOH terhadap Konversi Abu Layang Batubara menjadi zeolit. Sains dan Terapan Kimia Vol. 1 No. 2, Jurusan Kimia FMIPA, UNLAM, Banjarbaru.
- Sutarno, Y.A. dan Arief B., 2009, Kajian pengaruh Rasio Berat NaOH atau Abu Layang Batubara terhadap kristalinitas dalam sintesis Faujasit, Jurnal Ilmu Dasar Vol. 10 No. 1. Jurusan Kimia, UGM.
- Susmita, R., 2012, Analisis Sifat Listrik Polimer Polianilin (PANi) Terhadap penambahan Abu Dasar sebagai Elektroda Kapasitor, Skripsi, Jurusan Fisika FMIPA, Universitas Andalas, Padang.
- Tunjungsari, R., 2008, Studi Adsorbsi Ion Logam Pb (II) oleh Abu dasar Batubara, Skripsi, FMIPA UGM. Yogyakarta.
- Wardani, F., 2013, Pengaruh lama waktu Refluks terhadap hasil sintesis zeolit dari bahan batu Abu Dasar batubara dengan metode hidrotermal, Skripsi, Teknologi fakultas Sains dan Teknologi Universitas Islam Negeri Sunan Kalijaga.
- Yanti, Y., 2009, Sintesis Zeolit A dan Zeolit Karbon Aktif dari Abu Dasar PLTU Paiton dengan Metode Peleburan, Skripsi, ITS, Surabaya.
- Yunica, F., 2013, Sintesis dan Karakterisasi sifat listrik PaNI Zeolit dari Bottom ash, Skripsi, Jurusan Fisika FMIPA Universitas Andalas, Padang.
- Yusri, S., 2012, Sintesis dan Karakterisasi Zeolit ZSM-5 Mesopori dengan Secondary template dan studi awal katalis Oksidasi Metana, Skripsi, UI, Depok.
- <http://zilazulaiha.blogspot.com/2011/10/refluks.html>, diakses pada mei 2014