

UKURAN PARTIKEL DAN KONFORMASI KRISTAL ZEOLIT-A HASIL SINTESIS DENGAN PENAMBAHAN TETRAPROPILAMMONIUM HIDROKSIDA (TPAOH)

Nurul Widiastuti^{*)}, Farhanah, Didik Prasetyoko dan Hamzah Fansuri

Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS) Surabaya
Kampus ITS Sukolilo Surabaya 60111

^{*)}Penulis korespondensi: nurul_widiastuti@chem.its.ac.id

Abstract

PARTICLE SIZE AND CRYSTAL CONFORMATION OF SYNTHESIZED ZEOLITE-A WITH TETRAPROPYLAMMONIUM HYDROXIDE (TPAOH) ADDITION. *The aims of this research is to study the effect of tetrapropylammonium hydroxide (TPAOH) concentration in the synthesis of zeolite A to its physical characteristics such as crystallinity, crystal conformation and average crystal size. The zeolite A was synthesized with composition $3.165 \text{ Na}_2\text{O} : 1.000 \text{ Al}_2\text{O}_3 : 1.926 \text{ SiO}_2 : 128 \text{ H}_2\text{O} : x \text{ TPAOH}$ where x was 0; 0.0385; 0.0577; 0.0770; 0.1540 and 4.1602. The zeolite was crystalized under hydrothermal condition in a stainless steel autoclave at 100°C for 5 hours. The resulting crystal was washed with distilled water until pH 8 and then dried in an oven at 80°C for 24 hours. FT-IR and XRD analysis results show that the synthesized zeolite A at $x = 4.1602$ has the lowest crystallinity. It is estimated due to the mass of TPAOH was four times higger than the mass of zeolite framework components (Si and Al). SEM and PSD (Particle Size Distribution) analysis results show that TPAOH concentration affected the crystal conformation and the average size of zeolite A particles. The formation of chained crystal conformation was caused by the electrostatic interactions between TPA^+ and negatively charge of zeolite framework. In addition, the particle size of the synthesized zeolite A at $x = 0.1540$ was $2.024 \mu\text{m}$ which was smaller than the particle size of the synthesized zeolite A without TPAOH, which was $3.534 \mu\text{m}$.*

Keywords : average size of particles; crystal conformation; TPAOH; zeolite A

Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh konsentrasi TPAOH (Tetrapropilamonium hidroksida) dalam sintesis zeolit A terhadap sifat fisiknya yang meliputi kekristalan, konformasi kristal dan ukuran rata-rata kristal yang terbentuk. Pada penelitian ini zeolit A disintesis dengan komposisi $3,165 \text{ Na}_2\text{O} : 1 \text{ Al}_2\text{O}_3 : 1,926 \text{ SiO}_2 : 128 \text{ H}_2\text{O} : x \text{ TPAOH}$. Konsentrasi TPAOH divariasikan dengan nilai x adalah 0; 0,0385; 0,0577; 0,0770; 0,1540 dan 4,1602. Metode hidrotermal digunakan dalam penelitian ini dengan kondisi suhu hidrotermal 100°C dan waktu kristalisasi selama 5 jam dengan pH pencucian 8. Hasil karakterisasi menggunakan FT-IR (Fourier Transform – Infrared Spectroscopy) dan XRD (X-Ray Diffraction) menunjukkan bahwa zeolit A yang disintesis dengan $x = 4,1602$ memiliki kekristalan terendah. Hal ini diperkirakan terjadi karena masa TPAOH yang digunakan empat kali lebih besar daripada masa penyusun zeolit (Si dan Al). Berdasarkan hasil karakterisasi menggunakan SEM (Scanning Electron Microscopy) dan PSD (Particle Size Distribution), dapat diketahui bahwa TPAOH berpengaruh terhadap konformasi kristal dan rata-rata ukuran kristalnya. Terbentuknya konformasi kristal seperti rantai disebabkan oleh adanya interaksi elektrostatis antara muatan positif pada TPA^+ dan muatan negatif dari kerangka zeolit. Zeolit A yang disintesis dengan $x = 0,1540$ memiliki ukuran partikel rata-rata $2,024 \mu\text{m}$ yang lebih kecil dari daripada zeolit A tanpa TPAOH yaitu sebesar $3,534 \mu\text{m}$.

Kata kunci : ukuran partikel rata-rata; konformasi kristal; TPAOH; zeolite A

How to Cite This Article: Widiastuti, N., Farhanah, Prasetyoko, D., dan Fansuri, H., (2014), Ukuran Partikel dan Konformasi Kristal Zeolit–A Hasil Sintesis dengan Penambahan Tetrapropilamonium Hidroksida (TPAOH), Reaktor, 15(2), 132-138, <http://dx.doi.org/10.14710/reaktor.15.2.132-138>

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan salah satu material berpori yang memiliki kemampuan sebagai katalis, penukar ion, dan adsorben. Kinerja zeolit dalam aplikasinya sangat dipengaruhi oleh sifat kimia dan sifat fisika zeolit. Berbagai variasi kondisi sintesis telah dilakukan oleh para peneliti untuk meningkatkan kinerja zeolit. Salah satunya adalah sintesis zeolit A dengan variasi jumlah Si dan Al yang dilaporkan telah menghasilkan zeolit dengan nilai KTK berbeda (Mohamed dkk., 2009), sedangkan variasi lama waktu aging berpengaruh terhadap ukuran partikel zeolit yang dihasilkan (Alfaro dkk., 2007; Widiastuti dkk., 2014). Pada penelitian lainnya, variasi jenis dan konsentrasi templat organik menentukan morfologi kristal dan sifat katalitiknya pada sintesis ZSM-5 (Sang dkk., 2004). Pada sintesis zeolit M-MFI dengan teknik *microwave irradiation*, variasi prekursor logam berupa Sn, Zr, Sn/Zr, Ti/Zr berpengaruh pada bentuk konformasi kristal yang diperoleh (Tuel dan Taarit, 1993), sedangkan pada sintesis zeolit serat ANA, variasi templat organik berpengaruh terhadap konformasi kristal zeolit (Hwang dkk., 2006).

Salah satu templat organik dari golongan tetraalkilamonium yang sering digunakan dalam sintesis zeolit adalah TPAOH (Tetrapropilamonium Hidroksida). TPAOH berpengaruh signifikan terhadap karakteristik zeolit yang dihasilkan. Tokay dan Senatarlar (2012) telah melakukan variasi konsentrasi TPAOH pada sintesis nano zeolit silicate-1 yaitu $25\text{SiO}_2 : x \text{TPAOH} : y \text{H}_2\text{O} : 100 \text{EtOH}$ dengan nilai x dan y berurutan pada sampel R1 (3 dan 480), R2 (6 dan 480), dan R3 (9 dan 480). Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa semakin tinggi konsentrasi TPAOH yang digunakan, semakin kecil distribusi ukuran partikel yang didapatkan yaitu $R1 = 245 \pm 16$ nm, $R2 = 105 \pm 3$ nm dan $R3 = 95 \pm 6$ nm. Penelitian lain dilakukan oleh Liu dkk. (2005) menggunakan TPAOH sebagai templat organik dalam pembentukan zeolit ANA dengan konformasi serat. TPAOH berperan dalam mekanisme pembentukan zeolit serat ANA karena ion TPA^+ akan terikat pada permukaan pelat $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ secara adsorpsi pemasangan ion (*ion pairing*). Selanjutnya, zeolit yang memiliki muatan negatif akan terikat pada permukaan pelat $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ yang bermuatan positif karena adanya ion TPA^+ . Hal inilah yang menjadi alasan dipilihnya TPAOH.

Menurut Tuel dan Taarit (1993), sol silika dan $\text{Al}(\text{OH})_3$ hanya dapat menyerap kation seperti TPA^+ dan Na^+ pada pH di atas 7,5. Salah satu jenis zeolit yang disintesis pada pH di atas 7,5 adalah zeolit A. Zeolit A memiliki nilai KTK sebesar 90% seperti yang dilaporkan dalam adsorpsi logam berat seperti Zn (II) (Tuel dan Taarit, 1993). Selain itu, zeolit A relatif mudah disintesis karena dapat terbentuk pada suhu 90°C (Said, 2009). Zeolit A memiliki aplikasi yang luas dalam skala laboratorium maupun industri. Oleh karena itu, zeolit A dipilih sebagai objek dalam penelitian ini untuk mempelajari pengaruh adanya templat organik TPAOH dalam sintesis zeolit A. Pada

penelitian ini dipelajari pengaruh konsentrasi templat organik terhadap ukuran partikel, bentuk morfologi kristal, dan konformasi bentuk kristal zeolit yang diperoleh.

METODOLOGI PENELITIAN

Alat dan Bahan

Alat yang digunakan dalam penelitian ini antara lain *stainless steel autoclave*, oven, pH meter, *furnace*, FT-IR Shimadzu, XRD Philips X'Pert, SEM ZEISS Evo MA 10, dan PSD Mastersizer 2000. Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain NaOH, NaAlO_2 , Na_2SiO_3 , dan TPAOH MERCK 40% yang semuanya berkualitas p.a.

Prosedur Kerja

Sintesis zeolit A tanpa templat organik

Sintesis zeolit A terdiri atas beberapa langkah. Mula-mula disiapkan larutan untuk sintesis zeolit A dengan komposisi molar: $3,165 \text{Na}_2\text{O} : 1,000 \text{Al}_2\text{O}_3 : 1,926 \text{SiO}_2 : 128 \text{H}_2\text{O}$. Tahapan yang dilakukan dalam menyiapkan larutan sintesis adalah sebagai berikut: 2,82 g NaOH dilarutkan ke dalam air terdemineralisasi sebanyak 85,68 g sampai semua NaOH terlarut sempurna. Selanjutnya larutan NaOH tersebut dibagi menjadi dua bagian dengan volume yang sama dan dimasukkan ke dalam botol polietilen berpenutup serta dinamakan larutan A dan B. Larutan A ditambahi dengan 7,69 g. NaAlO_2 dan larutan B ditambahi 13,49 g dengan Na_2SiO_3 . Masing-masing larutan tersebut diaduk menggunakan pengaduk magnetik dalam kondisi botol tertutup selama 20 menit sampai larutan berwarna jernih. Setelah itu, larutan B dicampurkan ke dalam larutan A lalu diaduk menggunakan pengaduk magnetik selama 10 menit. Pada tahap kedua, larutan sintesis zeolit A dimasukkan ke dalam *stainless steel autoclave*. Autoclave ditutup rapat dan dimasukkan ke dalam oven bersuhu 100°C . Kondisi hidrotermal ini dipertahankan selama 5 jam hingga terjadi kristalisasi zeolit. Setelah dilakukan sintesis hidrotermal, padatan/kristal zeolit yang dihasilkan dicuci dengan air terdemineralisasi sampai pH filtrat mencapai 8. Padatan yang diperoleh selanjutnya dikeringkan pada suhu 80°C selama 24 jam.

Sintesis zeolit A menggunakan templat organik

Langkah-langkah yang dilakukan dalam sintesis zeolit A menggunakan templat organik berupa TPAOH sama dengan sintesis zeolit A tanpa templat organik dengan perbandingan komposisi molar $3,165 \text{Na}_2\text{O} : 1,000 \text{Al}_2\text{O}_3 : 1,926 \text{SiO}_2 : 128 \text{H}_2\text{O} : x \text{TPAOH}$. Namun, yang membedakan diantara keduanya terletak pada langkah pembuatan larutan sintesis. Larutan TPAOH 22,5% ditambahkan ke dalam *stainless steel autoclave* setelah larutan A dan B. Campuran larutan A dan B serta TPAOH selanjutnya diaduk di dalam autoclave dengan pengaduk magnetik selama 16 jam. Setelah diaduk, autoclave ditutup rapat dan dilanjutkan dengan prosedur hidrotermal, pencucian, dan pengeringan

yang sama sintesis dengan sintesis zeolit A tanpa templat organik. Dalam penelitian ini, komposisi molar TPAOH divariasikan sedemikian rupa sehingga diperoleh nilai x sebesar 0,0385; 0,0577; 0,0770; 0,1540 dan 4,1602.

Semua padatan/kristal yang dihasilkan dari sintesis, baik tanpa maupun dengan TPAOH, dikalsinasi pada suhu 500°C selama 6 jam dengan laju kenaikan suhu sebesar 50°C/jam.

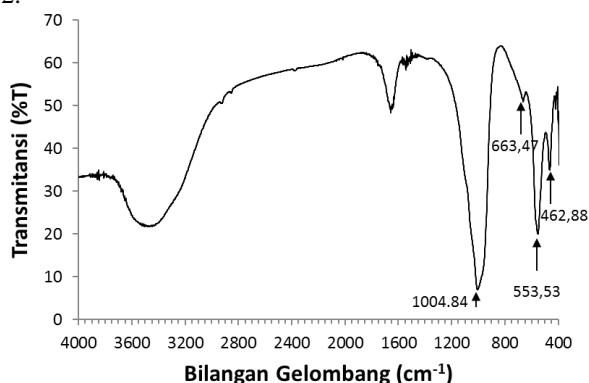
Karakterisasi zeolit A

Teknik karakterisasi yang dilakukan dalam penelitian ini antara lain FT-IR, XRD, PSD, dan SEM. Karakterisasi IR digunakan untuk mengidentifikasi adanya vibrasi ikatan T-O (T = Si atau Al) asimetri dan simetri dalam zeolit A. Karakterisasi XRD digunakan untuk mengkonfirmasi adanya fase kristal zeolit A pada zeolit yang telah disintesis dengan melakukan *search and match* dengan database yang ada. Karakterisasi PSD digunakan untuk mengetahui rata-rata ukuran partikel zeolit A yang telah disintesis. Sedangkan untuk karakterisasi SEM digunakan untuk mengetahui bentuk morfologi kristal zeolit A.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Zeolit A

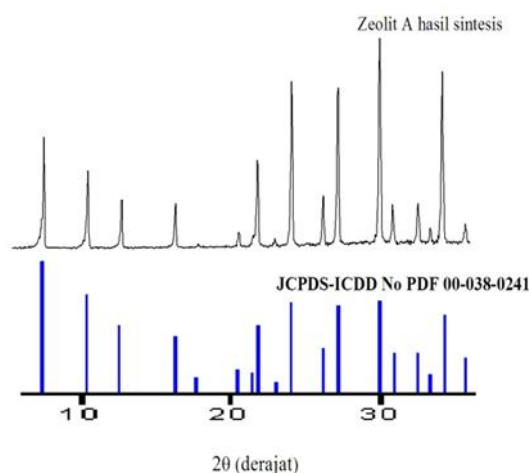
Pada penelitian ini disiapkan larutan sintesis zeolit A dengan rasio komposisi 3,165Na₂O:1Al₂O₃:1,926SiO₂:128H₂O. Rasio tersebut diambil dari resep Robson (2001) yang terdapat pada *Atlas of Zeolite Framework Types*. Rasio ini telah terbukti menghasilkan kristal zeolit A berdasarkan penelitian yang telah dilakukan oleh Yanti (2009). Setelah proses hidrotermal, pencucian dan pengeringan, didapatkan padatan berwarna putih. Selanjutnya padatan putih dianalisa menggunakan FT-IR dan XRD untuk membuktikan bahwa padatan yang telah disintesis adalah zeolit A yang dapat dilihat pada Gambar 1 dan 2.



Gambar 1. Spektra FT-IR dari zeolit A hasil sintesis

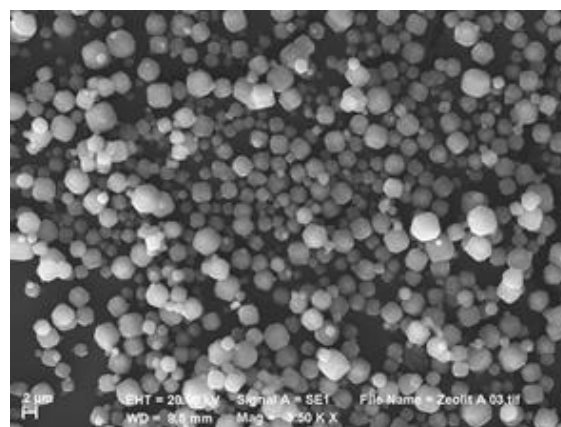
Gambar 1 menunjukkan adanya puncak serapan vibrasi khas zeolit A antara lain puncak 1004,84 cm⁻¹ akibat adanya vibrasi T-O *asymmetric stretching* (dimana T = Si atau Al) dan pada puncak 663,47 cm⁻¹ akibat adanya vibrasi T-O *symmetric stretching*. Spektra tersebut juga memunculkan puncak paling khas untuk membuktikan bahwa zeolit

A telah berhasil disintesis dalam penelitian ini yaitu puncak 553,53 cm⁻¹ dan 462,88 cm⁻¹ karena adanya vibrasi D4-R yang merupakan struktur SBU zeolit A (Rakoczy dan Traa, 2003). Hasil FT-IR ini juga dikonfirmasi dan diperkuat dengan hasil karakterisasi XRD yang dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Difraktogram sinar-X zeolit A hasil sintesis

Berdasarkan hasil pencocokan, ternyata puncak-puncak yang terdapat pada Gambar 2 sesuai dengan data *Powder Diffraction File* (PDF) No. 00-038-0241 yang merupakan pola difraksi sinar X dari zeolit A. Zeolit A yang terbentuk adalah tipe zeolit A dengan unit sel kristal kubus. Dengan demikian padatan yang terbentuk setelah perlakuan kristalisasi hidrotermal selama 5 jam pada suhu 100°C merupakan zeolit fasa tunggal yaitu zeolit A. Zeolit A ini juga dianalisis menggunakan SEM untuk mengetahui bentuk morfologinya dan dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Mikrograf SEM zeolit A hasil sintesis

Berdasarkan Gambar 3 dapat dilihat bahwa zeolit A yang telah disintesis pada penelitian ini memiliki bentuk morfologi kubus dengan konformasi menyebar. Namun, beberapa struktur kristal zeolit A yang dihasilkan nampak kurang sempurna. Hal ini disebabkan oleh waktu hidrotermal yang kurang lama

sehingga proses kristalisasi berjalan kurang optimal. Akibatnya morfologi kristal yang dihasilkan tidak seragam dan banyak yang tidak bersiku tajam. Meskipun demikian, dari hasil analisis yang telah dilakukan dapat dikatakan bahwa zeolit A telah berhasil disintesis pada penelitian ini.

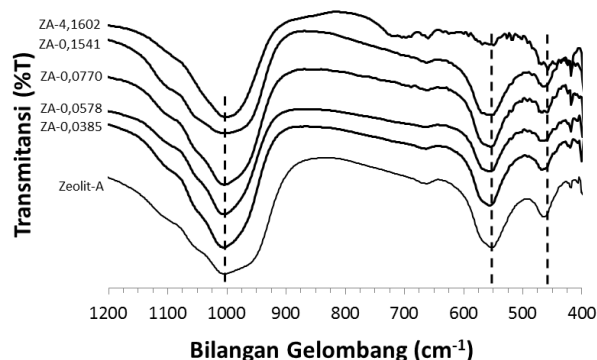
Pengaruh Konsentrasi TPAOH dalam Sintesis Zeolit A

Sintesis zeolit A menggunakan variasi konsentrasi TPAOH telah berhasil dilakukan dalam penelitian ini untuk mengetahui pengaruh TPAOH dalam sintesis zeolit A. Komposisi pereaksi dan TPAOH yang digunakan dalam larutan sintesis adalah $3,165\text{Na}_2\text{O} : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 1,926\text{SiO}_2 : 128\text{H}_2\text{O} : x\text{TPAOH}$ dengan x adalah 0,0385; 0,0577; 0,0770; 0,1540; dan 4,1602.

Hasil akhir dari campuran ini tetap menghasilkan gel berwarna putih, sama dengan yang dihasilkan pada campuran tanpa TPAOH. Selanjutnya, gel yang diperoleh tersebut dikristalisasi secara hidrotermal, dicuci dan kemudian dikeringkan dengan kondisi yang sama seperti sintesis zeolit A dan didapatkan hasil akhir berupa padatan berwarna putih. Padatan tersebut kemudian dikalsinasi pada suhu 500°C selama 6 jam dengan laju kenaikan suhu sebesar $50^\circ\text{C}/\text{jam}$ untuk menghilangkan templat organik. Tahapan kalsinasi ini dilakukan dengan menaikkan suhu perlahan agar tidak merusak struktur zeolit yang dihasilkan.

Spektra FT-IR dari zeolite A (selanjutnya disingkat ZA) yang dihasilkan dapat dilihat pada Gambar 4. Gambar tersebut juga menunjukkan adanya puncak vibrasi khas ZA yaitu vibrasi dari regangan asimetris ikatan T-O (dimana T = Si atau Al) dan regangan simetris T-O yang tidak mengalami pergeseran yang signifikan pada keenam spektra tersebut. Sampel ZA dengan $x = 4,1602$ memiliki puncak vibrasi D4-R dengan intensitas terendah jika dibandingkan dengan $x = 0,0385$ hingga 0,1540. Hal ini menunjukkan bahwa sampel dengan $x = 4,1602$ mengandung zeolit A dalam jumlah yang lebih sedikit daripada sampel ZA yang lainnya. Sampel ZA dengan x selain 4,1602 menunjukkan puncak vibrasi D4-R dengan intensitas yang tinggi, sehingga dapat disimpulkan bahwa sintesis zeolit A menggunakan TPAOH hanya menghasilkan zeolit A dengan jumlah yang banyak ketika komposisi TPAOH dalam campuran pereaksi berkisar antara 0,0385 dan 0,1540.

Selain itu, berdasarkan spektra FT-IR pada Gambar 4 terlihat bahwa sebenarnya terjadi sedikit pergeseran pada puncak vibrasi D4-R antara ZA yang disintesis tanpa TPAOH dan ZA dengan TPAOH. Besar konsentrasi TPAOH yang digunakan sebanding dengan terjadinya pergeseran vibrasi D4-R pada bilangan gelombang yang lebih jauh, kecuali untuk sampel ZA dengan $x = 0,0770$ dan 4,1602 yang mengalami penurunan bilangan gelombang

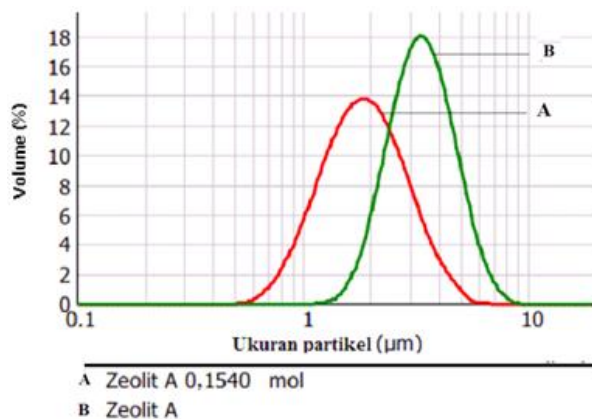


Gambar 4. Hasil spektra FTIR ZA (Zeolit A) dengan variasi konsentrasi TPAOH

Pergeseran spektra FT-IR pada puncak vibrasi D4-R yang terjadi pada penelitian ini hampir sama dengan yang dilaporkan oleh Tuel dan Taarit (1993) yang mensintesis zeolit TS-1 menggunakan variasi konsentrasi TPAOH/TEAOH dengan rasio komposisi $1,00\text{SiO}_2 : 0,02\text{TiO}_2 : 0,35 [x\text{TPAOH} + (1-x)\text{TEAOH}] : 40\text{H}_2\text{O}$ dengan $x = 1; 0,833$ dan $0,667$. Hasil spektra FT-IR pada penelitian tersebut sekilas juga tidak mengalami pergeseran yang signifikan. Namun, menurut Huang dan Jiang (1997) puncak bergeser sedikit sekitar 10 cm^{-1} yang disebabkan oleh perbedaan rata-rata ukuran partikel. Puncak vibrasi dengan pergeseran bilangan gelombang yang lebih besar menunjukkan bahwa partikel tersebut memiliki ukuran yang lebih kecil ($0,1-0,3\ \mu\text{m}$) sedangkan kristal dengan ukuran partikel yang lebih besar ($>10\ \mu\text{m}$) muncul pada pergeseran bilangan gelombang yang lebih rendah. Pergeseran puncak vibrasi D4-R yang terjadi pada penelitian ini diperkirakan juga karena faktor perbedaan rata-rata ukuran partikel. Akan tetapi, hasil karakterisasi menggunakan FT-IR masih belum bisa digunakan untuk menyimpulkan kebenaran hal tersebut. Oleh karena itu, karakterisasi PSD dibutuhkan untuk mengkonfirmasi bahwa pergeseran puncak vibrasi yang terjadi pada penelitian ini disebabkan oleh perbedaan rata-rata ukuran partikel.

Hasil karakterisasi menggunakan PSD (*Particle Size Distribution*) dapat dilihat pada Gambar 5. Berdasarkan gambar tersebut dapat dilihat adanya pergeseran kurva PSD yang cukup signifikan antara sampel ZA yang disintesis tanpa TPAOH dan ZA yang disintesis dengan $x = 0,1540$. Hal ini menunjukkan bahwa penggunaan TPAOH dalam sintesis zeolit A dapat memperkecil ukuran partikel yang didapatkan, terbukti untuk sampel zeolit A tanpa TPAOH memiliki rata-rata ukuran partikel sebesar $3,534\ \mu\text{m}$. Untuk sampel zeolit A dengan $x = 0,1540$ memiliki ukuran partikel rata-rata yang lebih kecil yaitu $2,024\ \mu\text{m}$. Hal ini disebabkan oleh bertambahnya jumlah agen *mineralizer* berupa ion OH^- dari TPAOH yang dapat meningkatkan laju

nukleasi dan meningkatkan kelarutan Si dan Al (Rakoczy dan Traa, 2003). Oleh karena itu, dapat diketahui bahwa penggunaan TPAOH berpengaruh terhadap ukuran partikel rata-rata zeolit A yang diperoleh. Hal ini sesuai dengan hasil penelitian yang telah dilakukan oleh Tokay dan Senatarlar (2012).

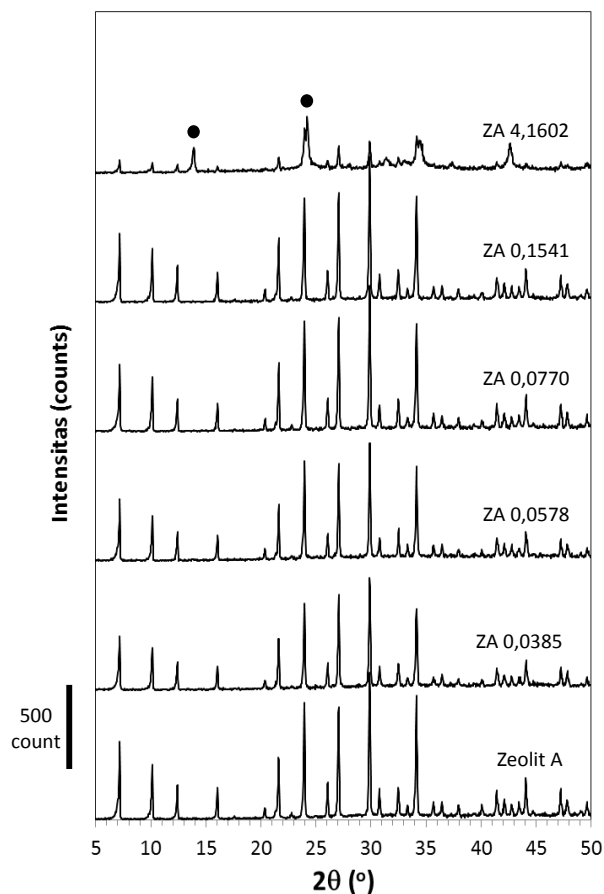


Gambar 5. Hasil karakterisasi PSD untuk zeolit A dan zeolit A 0,1540 TPAOH

Gambar 6 menunjukkan difraktogram sinar-X dari enam sampel zeolit yang telah disintesis dalam penelitian ini. Sampel ZA yang disintesis dengan $x = 0,0385, 0,1540$ menunjukkan puncak-puncak difraksi 2θ yang sesuai dengan kristal zeolit A tanpa adanya puncak-puncak pengotor. Khusus difraktogram sampel ZA dengan $x = 4,1602$, terlihat beberapa puncak pengotor yang ditandai dengan simbol (●). Salah satu puncak mengindikasikan adanya fasa sodalit pada $2\theta = 13,90^\circ$ sesuai dengan data PDFNo. 00-086-1030. Difraktogram sinar-X ini memperkuat hasil analisis FT-IR yang menunjukkan bahwa kristal zeolit A pada sampel ZA dengan $x = 4,1602$ memiliki kekristalan terendah jika dibandingkan dengan sampel lainnya. Hal ini disebabkan oleh penggunaan TPAOH dalam jumlah empat kali lebih banyak daripada massa komponen pembentuk zeolit yaitu Na_2SiO_3 dan NaAlO_2 , sedangkan untuk sampel selain ZA dengan $x = 4,1602$ berhasil terbentuk fase tunggal zeolit A karena jumlah massa TPAOH yang digunakan tidak melebihi 50% dari masa zeolit A. Hasil ini juga diperkuat dengan hasil karakterisasi SEM yang dapat dilihat pada Gambar 7.

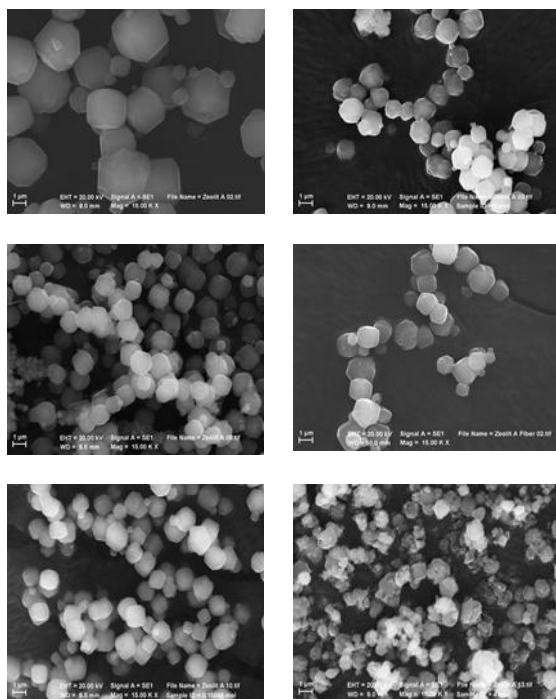
Perbedaan yang terdapat pada keenam difraktogram sinar-X pada Gambar 6 terletak pada intensitas puncak-puncak difraksinya. Hal ini sesuai dengan pernyataan Palmqvist (2003) yang mengatakan bahwa konsentrasi surfaktan berpengaruh terhadap tingkat keteraturan kristal yang diperoleh. Peningkatan konsentrasi surfaktan yang digunakan menyebabkan peningkatan keteraturan bentuk kristal. Namun ketika konsentrasi surfaktan yang digunakan terlalu tinggi maka justru dapat menurunkan keteraturan bentuk kristal yang diperoleh. Hal ini terbukti dari hasil yang didapatkan pada penelitian ini di mana intensitas semakin meningkat dengan bertambahnya jumlah

TPAOH yang digunakan. Akan tetapi, ketika jumlah TPAOH terlalu banyak seperti pada sampel zeolit A dengan $x = 4,1602$, maka keteraturan kristal yang dihasilkan menjadi lebih rendah yang ditandai dengan berkurangnya intensitas puncak-puncak difraksi. Pengurangan intensitas ini disebabkan oleh konsentrasi TPAOH yang terlalu tinggi.

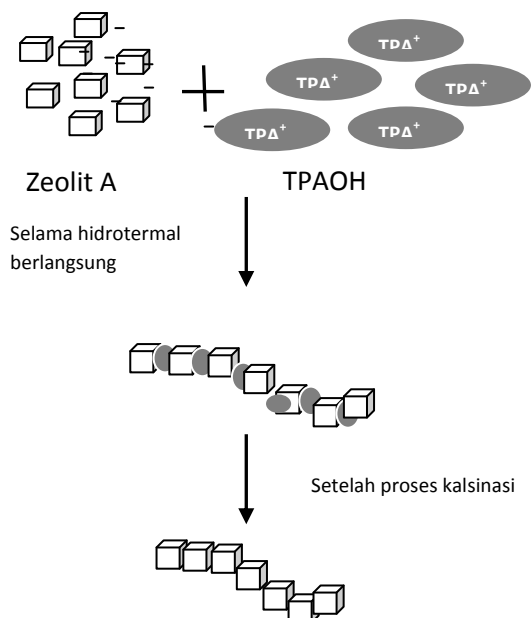


Gambar 6. Difraktogram sinar-X zeolit A tanpa dan dengan variasi konsentrasi TPAOH

Berdasarkan hasil analisis SEM yang ditunjukkan pada Gambar 7, dapat dilihat bahwa zeolit A yang disintesis pada penelitian ini memiliki morfologi kubus, kecuali untuk sampel ZA dengan $x = 4,1602$ yang menunjukkan terbentuknya zeolit tipe lain, salah satunya adalah sodalit yang dapat dilihat pada Gambar 7f. Hal ini sesuai dengan hasil karakterisasi menggunakan FT-IR dan XRD yang secara berurutan menunjukkan bahwa untuk sampel ZA dengan $x = 4,1602$ menunjukkan intensitas kristal zeolit A yang paling rendah dan terdapat puncak pengotor. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa penggunaan TPAOH berpengaruh terhadap jenis zeolit yang terbentuk.



Gambar 7. Mikrograf SEM hasil sintesis ZA (Zeolit A) dengan variasi konsentrasi TPAOH (a) ZA, (b) ZA 0,0385, (c) ZA 0,0577, (d) ZA 0,0770, dan (e) ZA 0,1540 mol.



Gambar 8. Ilustrasi sederhana interaksi elektrostatis antara TPA⁺ dengan muatan negatif zeolit A

Berdasarkan hasil studi literatur yang telah dilakukan, sejauh ini masih belum pernah dilaporkan sintesis zeolit A menggunakan templat organik berupa TPAOH. Selama ini, templat organik yang digunakan dalam sintesis zeolit A adalah TMAOH (Rakoczy dan Traa, 2003; Yang dkk., 2006). Menurut penelitian yang telah dilakukan oleh Rakoczy dan Traa (2003)

diperoleh hasil bahwa variasi konsentrasi TMAOH dalam larutan sintesis berpengaruh terhadap ukuran partikel rata-rata yang didapatkan. Semakin besar konsentrasi TMAOH yang digunakan, ukuran partikel rata-ratanya semakin kecil (di bawah 100 nm). Namun, jika konsentrasi TMAOH yang digunakan semakin berkurang, maka diperoleh ukuran partikel rata-rata yang lebih besar (di atas 500 nm).

Oleh karena itu, berdasarkan hasil penelitian ini dapat diketahui tentang pengaruh penggunaan TPAOH terhadap karakteristik zeolit A yang diperoleh. Penambahan TPAOH dalam sintesis zeolit A ternyata memiliki pengaruh yang lebih banyak daripada TMAOH, antara lain berpengaruh terhadap tipe zeolit yang dihasilkan, rata-rata ukuran partikel dan konformasi kristal yang diperoleh. TPAOH yang digunakan dalam sintesis zeolit A dapat mengubah tipe zeolit yang terbentuk, dalam kasus penelitian ini terbentuk tipe zeolit lain yaitu sodalit, karena faktor perbandingan komposisi antara TPAOH dengan masa zeolit; dapat memperkecil rata-rata ukuran partikel. Namun, dengan semakin meningkatnya konsentrasi TPAOH tidak berkorelasi linear dengan berkurangnya ukuran partikel rata-rata dan dapat meningkatkan keteraturan konformasi kristal seperti rantai.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil-hasil yang diperoleh pada penelitian ini maka dapat disimpulkan bahwa penggunaan TPAOH dalam sintesis zeolit A berpengaruh terhadap ukuran partikel rata-rata dan konformasi kristal yang diperoleh. Penggunaan TPAOH mengakibatkan terbentuknya konformasi kristal seperti rantai yang disebabkan oleh adanya interaksi elektrostatis antara muatan TPA⁺ dengan muatan negatif dari kerangka zeolit. Selain itu, TPAOH juga dapat memperkecil ukuran partikel yang didapatkan di mana zeolit A yang disintesis tanpa TPAOH memiliki ukuran partikel rata-rata sebesar 3,534 μm sedangkan zeolit A yang disintesis menggunakan TPAOH 0,1540 mol memiliki ukuran yang lebih kecil yaitu 2,024 μm.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi yang telah mendanai penelitian ini melalui Program Desentralisasi Penelitian DITLITABMAS, Penelitian Unggulan ITS tahun 2013-2014

DAFTAR PUSTAKA

Alfaro, S., Rodriguez, C., Valenzuela, M.A., and Bosch, P., (2007), Aging Time Effect on the Synthesis of Small Crystal LTA Zeolites in the Absence of Organic Template, *Materials Letters*, 61, pp. 4655-4658.
 Huang, Y. and Jiang, Z., (1997), Vibrational Spectra of Completely Siliceous Zeolite-A, *Microporous Materials*, 12, pp. 341-345.

- Hwang, Y.K., Jin, T.H., Kim, J.M., Kwon, Y., Park, S., and Chang, J., (2006), Microwave Synthesis of Metallosilicate Zeolites with Fibrous Morphology, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 6, pp. 1-6.
- Liu, B.S., Tang, D.C., and Au, C.T., (2005), Fabrication of Analcime Zeolite Fibers by Hydrothermal Synthesis, *Microporous and Mesoporous Materials*, 86, pp. 106-111.
- Mohamed, R.M., Ismail, A.A., Kini, G., Ibrahim, I.A., and Koopman, B., (2009), Synthesis of Highly Ordered Cubic Zeolite A and Its Ion-Exchange Behavior, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 348, pp. 87-92.
- Palmqvist, A.E.C., (2003), Synthesis of Ordered Mesoporous Materials Using Surfactant Liquid Crystals or Micellar Solutions, *Current Opinion in Colloid and Interface Science*, 8, pp. 145-155.
- Rakoczy, R.A. and Traa, Y., (2003), Nanocrystalline Zeolite A: Synthesis, Ion Exchange and Dealumination, *Microporous and Mesoporous Materials*, 60, pp. 69-78.
- Robson, H., (2001), *Linde Type A: Verified Synthesis of Zeolitic Materials*, Elsevier Science B.V.
- Said, N.F., (2009), Adsorpsi Ion Logam Cu(II) pada Zeolit A yang Disintesis dari Abu Dasar Batubara PT IPMOMI PAITON dengan Metode Batch, *Skripsi*, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya, Indonesia.
- Sang, S., Chang, F., Liu, Z., He, C., He, Y., and Xu, L., (2004), Difference of ZSM-5 Zeolites Synthesized with Various Templates, *Catalysis Today*, 93-95, pp. 729-734.
- Tokay, B. and Senatalar, A.E., (2012), Variation of Particle Size and Its Distribution During the Synthesis of Silicalite-1 Nanocrystals, *Microporous and Mesoporous Materials*, 148, pp. 43-52.
- Tokay, B. and Senatalar, A.E., (2012), Variation of analcime zeolite fibers by hydrothermal synthesis, *Microporous and Mesoporous Materials*, 86, pp. 106-111.
- Tuel, A. and Taarit, Y.B., (1993), Synthesis of TS-1 from Titanosilicate Gels Containing TPAOH/TEAOH and TPAOH/NH₄OH Mixtures, *Microporous Materials*, 1, pp. 179-189.
- Widiastuti, N., Hidayah, M.Z.N., Prasetyoko, D., and Fansuri, H., (2014), Synthesis of zeolite X-carbon from coal bottom ash for hydrogen storage material, *Advanced Materials Letters*, 5, pp. 453-458.
- Yang, S., Li, Q., Wang, M., and Navrotsky, A., (2006), Competition of FAU and LTA in the Synthesis System (TMA,Na)₂O-Al₂O₃-SiO₂-H₂O, *Microporous and Mesoporous Materials*, 87, pp. 261-267.
- Yanti, Y., (2009), Sintesis zeolit-A dan Zeolit Karbon Aktif dari Abu Dasar PLTU Paiton dengan Metode Peleburan, *Master Thesis*, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya, Indonesia.