

PREPARASI DAN KARAKTERISASI ZEOLIT DARI ABU LAYANG BATUBARA SECARA ALKALI HIDROTERMAL

Jumaeri, W. Astuti dan W.T.P. Lestari^{*)}

Abstrak

Preparasi zeolit dari abu layang batubara PLTU Suralaya secara alkali hidrotermal telah dilakukan. Preparasi dilakukan terhadap abu layang yang telah direfluks dengan HCl 1M dan tanpa refluks. Larutan NaOH dengan konsentrasi tertentu (1 ; 2 dan 3 M) dicampur dengan abu layang batu bara dengan rasio 10 ml larutan tiap 1 gram abu layang, ke dalam tabung Teflon 100 ml dalam suatu autoclave stainless-steel. Autoclave kemudian dipanaskan pada temperatur 80-160 °C selama tiga hari. Zeolit sintesis yang dihasilkan selanjutnya diuji secara kualitatif dengan menggunakan Spektroskopi Inframerah, dan Difraksi Sinar-X. Hasil penelitian menunjukkan bahwa aktivasi abu layang dengan proses alkali hidrotermal dapat menghasilkan material yang mempunyai struktur mirip zeolit (zeolit-like). Produk hidrotermal terdiri dari campuran zeolit (Zeolit P, Zeolit Y) serta kristal sodalit dan mullit. Pada temperatur 160 °C, diperoleh zeolit dengan kristalinitas lebih tinggi dari pada 100 °C, baik melalui refluks atau tanpa refluks. Karakteristik zeolit yang terbentuk sangat ditentukan oleh kondisi proses, yang meliputi konsentrasi NaOH, waktu, dan temperatur.

Kata kunci: abu layang batu bara, alkali hidrotermal, preparasi, karakterisasi, zeolite

Pendahuluan

Pembangkit listrik tenaga uap yang menggunakan batu bara sebagai bahan bakarnya akan menghasilkan limbah gas dan limbah padat yaitu abu layang (*fly ash*) dan abu dasar (*bottom ash*) yang cukup besar jumlahnya. Abu layang yang dihasilkan berkisar 80-90 % dari total abu seluruhnya. PLTU Suralaya menghasilkan abu layang ± 750.000 ton per tahun (Nasrul dan Utama, 1995). Limbah abu layang merupakan masalah yang tidak asing lagi dihadapi oleh banyak negara di dunia yang menggunakan batu bara sebagai sumber energi. Di Indonesia jumlah pemakaian abu layang batu bara untuk berbagai tujuan masih sangat sedikit (Herry, 1993).

Saat ini pemakaian abu layang masih sangat terbatas. EPA, 1988, menyebutkan bahwa produksi abu layang di Amerika Serikat mencapai 70 juta ton pada tahun 1983. Dari jumlah ini 12,8 juta ton digunakan untuk berbagai keperluan, sedangkan sisanya dibuang di atas permukaan tanah baik secara langsung atau melalui pembentukan lumpur. Di Belanda *recycling* abu layang merupakan salah satu kajian riset yang sedang dikembangkan (Anonim, 1997). Produksi abu layang dunia mencapai hampir 500 juta metrik ton setiap harinya, dengan laju daur-ulang global hanya 15 % (Belardi dkk, 1998). India menghasilkan 90 juta ton abu layang setiap tahunnya (Keka, 2004), sedangkan Jepang menghasilkan abu layang lebih dari 10 juta ton dalam tahun 2000, dan kira-kira baru 50% yang sudah digunakan (Fukui, 2006). Akumulasi limbah ini bila tidak dimanfaatkan maka akan memerlukan tempat yang luas untuk menampungnya dan dapat menimbulkan masalah lingkungan.

Abu layang merupakan salah satu hasil samping

pembakaran batubara, yang terutama tersusun atas oksida-oksida dari senyawa anorganik. Banyaknya dan karakteristik abu yang dihasilkan sangat ditentukan oleh jenis batu bara dan sistem pembakaran yang digunakan. Abu batu bara merupakan materi sisa yang ada setelah semua materi yang dapat bakar (*flameable*) pada batu bara telah habis terbakar (Hessley, dkk., 1986). Oleh karena itu abu batu bara merupakan campuran yang kompleks sebagai hasil perubahan kimia komponen batu bara yang berlangsung selama pembakaran. Berdasarkan ukuran partikelnya abu batu bara dapat dibedakan menjadi dua macam, yaitu abu layang (*fly ash*) dan abu dasar (*bottom ash*).

Dermata dan X.Meng (2003) menyatakan abu layang adalah residu halus yang dihasilkan dari pembakaran batu bara gilingan (*grounded*) atau serbuk (*powdered*) yang dipindahkan dari tungku pembakaran melalui boiler oleh aliran gas buang. Abu layang adalah abu batubara yang berupa serbuk halus yang tidak dapat terbakar dengan distribusi ukuran 1-100 µm dan relatif homogen (Maulbetch dan Muraka, 1983). Bila tidak dilewatkan presipitator elektrostatis abu ini akan beterbangan di udara karena ukuran partikelnya relatif kecil. Abu layang mempunyai warna keabu-abuan dan jumlahnya kira-kira 85% dari total abu yang dihasilkan.

Sesuai dengan konstituen batu bara, abu layang tersusun terutama dari senyawa silikat (SiO_2), alumina (Al_2O_3), oksida besi dan kalsium serta senyawa Mg, Na, Ti, K dalam jumlah yang lebih kecil. Sebagai ilustrasi, komposisi beberapa oksida yang terdapat pada abu layang batu bara adalah sebagai berikut: SiO_2 54,59 %; Al_2O_3 31,69 %; MgO

^{*)} Jurusan Kimia Fakultas MIPA UNNES
Jl. Raya Sekaran, Gunungpati, Semarang 50229

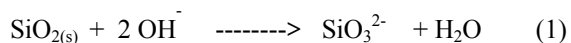
4,38 %; CaO 4,27 % dan Fe₂O₃ 3,19 % (Jumaeri, 1995). Berdasarkan komposisi tersebut, abu layang merupakan sumber (SiO₂ dan Al₂O₃) yang dapat digunakan dalam pembuatan zeolit melalui proses alkali hidrotermal.

Aktivasi abu layang dengan proses alkali hidrotermal telah dilakukan oleh para peneliti dengan berbagai tujuan. Di antara pemakaian hasil aktivasi alkali hidrotermal pada abu layang adalah untuk pengambilan ion cesium radioaktif (Mimura dkk, 2001), sebagai adsorben timbal (Woolard, dkk, 2000). Vucinic dkk, 2003 mempelajari pengaruh rasio silika/alumina terhadap karakteristik zeolit produk, sedangkan Kumar dkk, 2001 mempelajari sifat material porous produk alkali hidrotermal dan abu layang.

Zeolit dapat disintesis dari larutan silika dan alumina yang mengandung alkali hidroksida atau basa-basa organik untuk mencapai pH yang tinggi. Suatu gel silika alumina akan terbentuk melalui reaksi kondensasi. Jika kandungan silika dari zeolit adalah rendah, produk seringkali dapat dikristalkan pada temperatur 70 – 100°C, sedangkan jika zeolit kaya silika, sebagian besar produk hidrotermal adalah gel. Dalam kasus ini, gel selanjutnya ditempatkan dalam *autoclave* selama beberapa hari. Produk zeolit dengan struktur tertentu akan terbentuk pada temperatur antara 100-350°C. Variabel yang menentukan tipe produk meliputi komposisi larutan awal, pH, temperatur, kondisi *aging* serta laju pengadukan dan pencampuran. Sungguhpun demikian, sintesis zeolit terjadi sebagian besar melalui pendekatan *trial and error* dari variabel-variabel tersebut (Schubert dan Husing., 2000).

Mekanisme yang terjadi selama hidrotermal, diantaranya meliputi: terlarutnya sedikit padatan dalam air, difusi zat terlarut dan timbulnya senyawa yang berbeda dari padatan terlarut, yang terjadi pada suhu cukup rendah (100-300°C), pada *autoclave* di atas 100°C. Proses ini meliputi modifikasi tekstur atau struktur pada suatu padatan yang mengikuti hukum termodinamika dan proses ini mengurangi energi bebas pada sistem. Perubahan pada tekstur murni akan menyebabkan reduksi pada luas permukaan dan meningkatkan ukuran partikel dan pori (F'le et al., 1987).

Kapasitas air murni sebagai pelarut pada temperatur yang tinggi seringkali tidak mampu untuk melarutkan zat dalam proses pengkristalan, oleh karena itu perlu ditambahkan *mineralizer*. *Mineralizer* adalah suatu senyawa yang ditambahkan pada larutan yang encer untuk mempercepat proses kristalisasi dengan cara meningkatkan kemampuan melarutnya, sehingga yang biasanya tidak dapat larut dalam air dengan ditamhkannya *mineralizer* dapat menjadi larut. *Mineralizer* yang khas adalah suatu hidroksida dari logam alkali, khususnya amfoter dan oksida asam. *Mineralizer* yang digunakan untuk SiO₂ adalah NaOH, KOH, Na₂CO₃ atau NaF.



Zeolit merupakan material yang penting untuk katalis, adsorben dan aplikasi saringan molekuler (*molecular sieve*). Mineral zeolit adalah material silikat kristal dengan struktur yang sangat teratur dan porositasnya tinggi. Rumus umum zeolit adalah $M_{x/n}(\text{Al Si}_x\text{O}_{y+2(x+y)}) \cdot z \text{H}_2\text{O}$ (M : kation logam dengan muatan n). Kebanyakan zeolit dibuat melalui sintesis hidrotermal. Kondisi sintesis tergantung pada komposisi material yang diinginkan, ukuran partikel, morfologi dan sebagainya (Schubert dan Husing, 2000). Proses sintesis adalah sensitif terhadap sejumlah variabel seperti temperatur, pH, sumber silika dan alumina, jenis kation alkali dan waktu reaksi maupun surfaktan.

Bahan dan Metode Penelitian

Bahan dan alat

Abu layang batu bara digunakan sebagai sumber SiO₂ dan Al₂O₃. Sampel abu layang yang digunakan diperoleh dari hasil pembakaran batubara PLTU Suralaya. Bahan kimia yang digunakan dalam penelitian ini meliputi: NaOH, HCl, dan aquades. Adapun alat-alat yang digunakan meliputi: seperangkat alat-alat gelas, autoclave stainless-steel 100 ml, oven pemanas merk Memmert, shaker mekanik, pH meter merk Hanna Instruments, timbangan listrik merk Ohaus Explorer, sentrifuge, Seperangkat alat spektrofotometer inframerah merk Perkin Elmer dan Seperangkat alat difraksi sinar X merk Shimadzu – XRD 600.

Dalam penelitian ini telah dipelajari pengaruh kondisi-kondisi proses alkali hidrotermal yang meliputi konsentrasi NaOH dan temperatur proses terhadap karakteristik zeolit sintesis yang dihasilkan. Data karakteristik stuktur abu layang sebelum dan sesudah perlakuan alkali hidrotermal ditentukan melalui interpretasi spektra inframerah, sedangkan struktur kristalnya ditentukan dengan menggunakan difraktogram yang diperoleh dari difraksi sinar-X di Laboratorium Kimia MIPA UGM.

Preparasi zeolit dari abu Layang secara alkali hidrotermal.

Proses alkali hidrotermal terhadap abu layang batu bara dilakukan sebagai prosedur Mimura, 2001, dengan beberapa modifikasi. Larutan NaOH dengan konsentrasi tertentu (1 ; 2 dan 3 M) dicampur dengan abu layang batu bara, dengan rasio 10 ml larutan NaOH tiap 1 gram abu layang, ke dalam tabung inner teflon dalam suatu autoclave stainless-steel volume 100 ml. Autoclave kemudian dipanaskan pada temperature 100 dan 160°C selama 3 hari. Setelah waktu inkubasi yang dimaksud, autoclave didinginkan dan fase padatan disaring dari fase cair. Produk padatan dicuci dengan aquades, dikeringkan dengan udara pada 40°C selama satu hari. Padatan yang dihasilkan (zeolit sintesis) selanjutnya diuji secara kualitatif. Uji kualitatif yang berhubungan dengan struktur produk dilakukan dengan

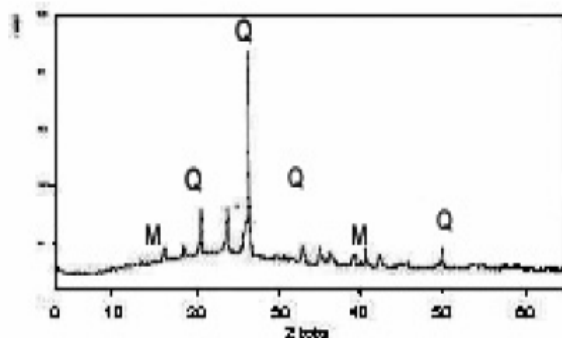
menggunakan Spektroskopi Inframerah, Perkin Elmer FTIR dan Difraksi Sinar-X, dengan Shimadzu XRD-6000.

Hasil dan Pembahasan

1. Hasil uji kualitatif difraksi sinar-X (XRD)

Uji kualitatif bertujuan untuk memperoleh informasi perubahan struktur mikro dan kristalin yang terjadi selama proses sintesis. Pola difraksi sinar X (XRD) dari sampel abu layang dan material zeolit sintetis diperoleh dengan menggunakan Difraktometer XRD-6000, merk Shimadzu. Kondisi operasi melibatkan radiasi Cu pada 40.0 kV 30 mA. Sampel discan dari 2θ $2^\circ - 70^\circ$. Data yang diperoleh berupa jarak antar bidang, intensitas dan sudut (2θ) yang kemudian dicocokkan dengan data pola difraksi sinar – X JCPDS (*Joint Committee for Powder Diffraction Standard*), atau hasil penelitian lain yang dilakukan, sehingga senyawa yang terdapat dalam sampel dapat diidentifikasi.

Difraktogram yang diperoleh dari sampel abu layang batubara tercantum pada Gambar 1.



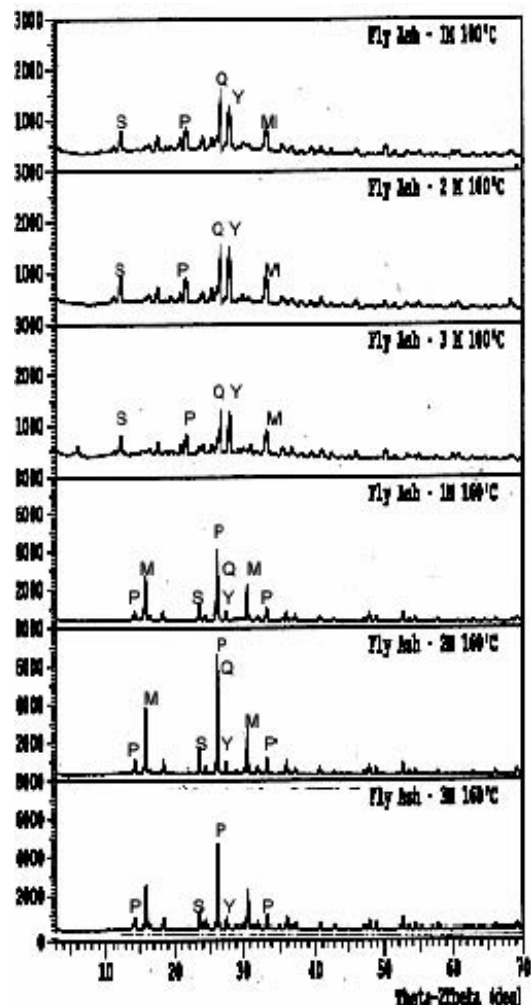
Gambar 1. Pola difraksi dari Abu layang batu bara PLTU Suralaya

Gambar 1 memperlihatkan puncak tajam pada $2\theta = 26,5980^\circ$ ($d = 3,34865 \text{ \AA}$), diikuti puncak tajam pada $2\theta = 23,975^\circ$ ($d = 3,70873 \text{ \AA}$), $2\theta = 50,0870^\circ$ ($d = 1,81972 \text{ \AA}$) dan $2\theta = 20,8042^\circ$ ($d = 4,26629 \text{ \AA}$). Menurut JCPDS no. 5-0490, puncak pada $2\theta = 26,5980^\circ$ dan $2\theta = 20,8042^\circ$ dan $2\theta = 50,0870^\circ$ merupakan puncak untuk senyawa kuarsa (SiO_2). Sedangkan puncak $2\theta = 23,9751^\circ$ menurut JCPDS no. 10-393 (Tony Suroto, 2004) merupakan puncak untuk mineral (sodium aluminium silikat / $\text{NaAl}(\text{SiO}_2)_3$). Dari difraktogram ini dapat dikatakan bahwa abu layang PLTU Suralaya disusun oleh komponen utama berupa SiO_2 , aluminosilikat dan fasa amorph (gelas). Fraksi gelas (amorph) merupakan fasa reaktif utama dalam aktivasi alkalis abu layang (Vucinic dkk., 2003).

Pengaruh konsentrasi NaOH

Difraktogram hasil perlakuan alkali hidrotermal dalam pembuatan zeolit sintesis dari abu layang pada konsentrasi dan temperatur yang berbeda tercantum pada Gambar 2. Penggunaan larutan NaOH pada proses hidrotermal abu layang menyebabkan terjadinya

konversi fraksi amorph dan sebagian mineral kuarsa dan alumina menjadi mineral sodalit, mullit, zeolit P dan zeolit Y.



Gambar 2. Difraktogram produk hidrotermal dengan NaOH 1, 2 dan 3 M, temperatur 100 dan 160°C.

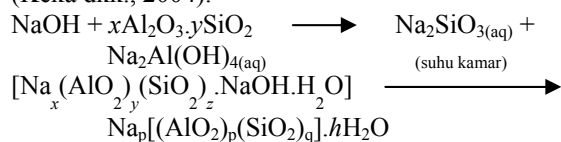
Pada Gambar 2 memperlihatkan puncak-puncak baru yang muncul pada $2\theta = 26,6982^\circ$; $28,1284^\circ$; $33,3805^\circ$; $21,6992^\circ$ dan $12,4772^\circ$. Interpretasi difraktogram produk hidrotermal dari Gambar 2 untuk temperatur 100°C dapat dilihat pada Tabel 1.

Berdasarkan Gambar 2 tampak bahwa makin tinggi konsentrasi NaOH yang digunakan untuk proses hidrotermal pada temperatur yang sama, makin rendah intensitas abu layang yang tidak bereaksi. Hal ini menunjukkan bahwa dengan bertambahnya konsentrasi NaOH, proporsi abu layang yang tidak bereaksi dalam produk semakin kecil. Hasil ini sesuai dengan yang diperoleh Fukui dkk., 2006. Sedangkan Budiyanoro, 2005, mendapatkan bahwa dengan meningkatnya konsentrasi NaOH, pembentukan mineral sodalit ($\text{Na}_4\text{Al}_3\text{O}_{12}\text{OH}$), serta zeolit-P ($\text{Na}_6(\text{AlO}_6)_6(\text{SiO}_2)_{10} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$), semakin baik.

Tabel 1. Interpretasi difraktogram pada 100°C

No	2θ (°)	d (Å)	Interpretasi
1.	26,6982	3,33631	SiO ₂ (kuarsa) (Pungor, 1995)
2.	28,1284 17,7034	3,16984 5,00593	Zeolit Y (Querol, dkk., 1999)
3.	33,3805	2,68213	Mullite (Al ₆ Si ₂ O ₁₃) (Budiyantoro, 2005)
4.	21,6992 26,2200	4,09230 3,39607	Zeolit P (Budiyantoro, 2005)
5.	12,4772	7,08849	Sodalite (Budiyantoro, 2005)

Produk hidrotermal yang diperoleh pada temperatur 100°C, dengan konsentrasi NaOH yang lebih tinggi, 2M, zeolit Y dan sodalit meningkat, sedangkan zeolit P hampir sama dengan perlakuan NaOH 1M. Barrer, 1982, menyatakan bahwa keberadaan konsentrasi OH⁻ yang relatif besar dalam sistem larutan menyebabkan spesies Al(OH)₄⁻, berkurang jumlahnya akibat adanya proses dehidrasi membentuk ion AlO₂⁻ atau sebagai dimernya, yaitu [(OH)₃Al-O-Al(OH)₃]²⁻. Proses dehidrasi ini akan mempermudah terbentuknya kerangka silika alumina pada zeolit terutama sodalit yang memiliki kerangka polimer silika alumina yang cukup stabil (Budiyantoro, 2005). Peran NaOH sebagai mineralizer dalam proses sintesis zeolit secara alkali hidrotermal, seperti ditunjukkan pada reaksi 2 (Keka dkk., 2004).



Reaksi pembentukan zeolit dari abu layang terdiri dari proses pelarutan spesies Si dan Al dari abu layang yang dapat larut, dan proses pembentukan zeolit dengan kedua spesies tersebut (Fukui dkk., 2006). Jika konsentrasi larutan NaOH yang digunakan divariasi, maka laju pelarutan spesies Si dan Al yang dapat larut dari abu layang akan berubah. Oleh karena akan menghasilkan fasa kristal zeolit yang dihasilkan.

Pengaruh Temperatur.

Perlakuan pada temperatur 160°C mempengaruhi karakteristik produk hidrotermal yang dihasilkan (Tabel 2).

Gambar 2 juga memperlihatkan difraktogram produk hidrotermal pada 160°C. Puncak tajam tampak pada 2θ=26,0522° diikuti puncak pada 2θ=15,9084° ; 30,6228° ; 23,4912° dan 33,3654° Interpretasi difraktogram yang diperoleh diringkas pada Tabel 2 di atas.

Kenaikan temperatur pada dasarnya tidak menimbulkan perubahan difraktogram produk hidrotermal yang berarti. Fenomena yang muncul akibat kenaikan temperatur bertambahnya intensitas fase

kristalin dan semakin berkurangnya fase amorf, seperti yang terlihat pada Gambar 2. Hal ini menunjukkan adanya kenaikan kristalinitas produk hidrotermal akibat kenaikan temperatur.

Tabel 2 Interpretasi difraktogram pada 160°C

No.	2θ (°)	d (Å)	Interpretasi
1.	26,0522 33,3654 14,3624	3,41756 2,68331 6,16202	Zeolit P (Zhao, et.al., 1997)
2.	15,9084 30,6228	5,56650 2,91709	Mullite (Al ₆ Si ₂ O ₁₃) (Budiyantoro, 2005)
3.	35,9036	2,49921	SiO ₂ (Pungor, 1995)
4.	23,4912	3,78402	Sodalite (Budiyantoro, 2005)
5.	27,6000 47,8513	3,22932 1,89939	Zeolit Y (Querol, dkk., 1999)

Dengan bertambahnya temperatur proses hidrotermal akan meningkatkan frekuensi tumbukan antara abu layang dan NaOH, meningkatkan tumbukan efektif yang terjadi dan selanjutnya mempercepat dan meningkatkan pembentukan kristal zeolit. Produk hidrotermal pada kondisi temperatur aktivasi 160°C mempunyai tingkat kristalinitas paling baik dibandingkan tingkat kristalinitas pada temperatur hidrotermal 100°C (Gambar 2). Penelitian sebelumnya yang telah dilakukan oleh Mimura (2001) juga memberikan hasil yang sama, bahwa pada temperatur 160°C produk hidrotermal memiliki kristalinitas paling baik.

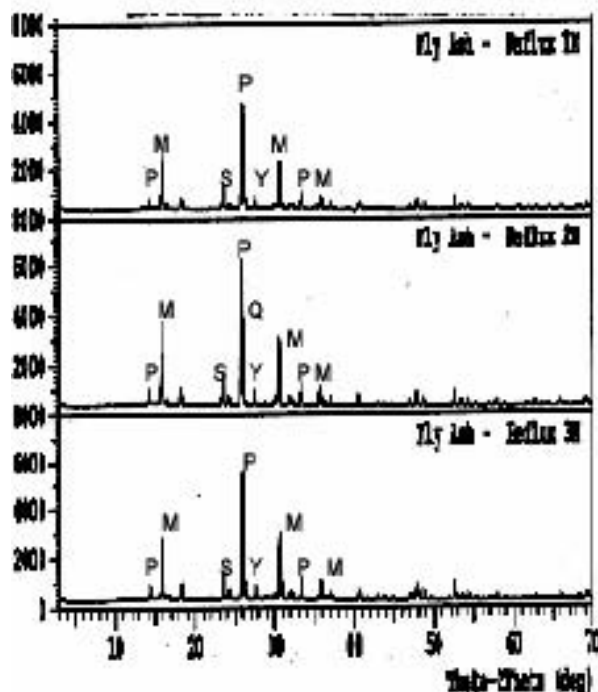
Pada temperatur yang lebih tinggi (160°C), terjadi kenaikan intensitas yang berarti untuk komponen mullit dan zeolit P pada semua konsentrasi larutan NaOH yang digunakan dalam proses hidrotermal. Adapun kuarsa dan zeolit Y berangsur-angsur semakin rendah intensitasnya dengan bertambahnya konsentrasi NaOH yang digunakan. Zeolit P dan mullit ada pada intensitas maksimal pada konsentrasi NaOH 2M. Pada konsentrasi 3M produk hidrotermal terutama tersusun oleh mineral mullit dan zeolit P, sedangkan kuarsa tidak muncul dan zeolit Y serta sodalit intensitasnya sangat rendah.

Pengaruh perlakuan awal abu layang dengan larutan HCl

Sebelum dilakukan proses alkali hidrotermal abu layang direfluks dengan HCl 1M selama satu jam, selanjutnya dilakukan proses alkali hidrotermal dengan larutan NaOH 1, 2 dan 3M pada temperatur 160°C. Hasil difraktogram zeolit sintesis dengan perlakuan awal larutan HCl 1M terhadap abu layang sebelum dilakukan proses alkali hidrotermal disajikan pada Gambar 3.

Pada dasarnya komponen mineral yang diperoleh dari zeolitisasi abu layang, tidak jauh berbeda dengan tanpa refluks. Difraktogram tersebut memperlihatkan bahwa puncak-puncak fase kristalin

yang didominasi berturut-turut oleh zeolit P, millit dan sodalit, lebih tajam dan berkurangnya fase amorph yang signifikan. Hal ini disebabkan, selain SiO_2 dan Al_2O_3 , abu layang mengandung beberapa komponen lain yang tidak diinginkan dalam sintesis zeolit. Beberapa komponen tersebut akan mengganggu dalam proses zeolitisasi. Material-material yang tidak diinginkan, oksida-oksida logam yang ada dapat dihilangkan melalui perlakuan asam, yaitu direfluks dengan HCl.



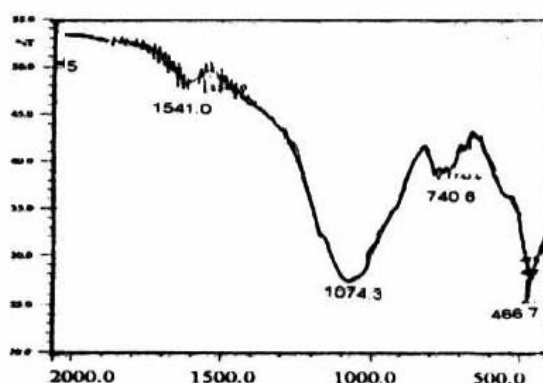
Gambar 3. Difraktogram produk hidrotermal dengan refluks HCL 1M, temperatur 160°C

Penggunaan HCl akan mengurangi konsentrasi besi oksida dan oksida-oksida alkali yang ada dalam abu layang, terutama yang terdapat pada bagian luar partikel abu (Natush dan Taylor, 1980), dan juga *meleaching* sejumlah Al_2O_3 . Oleh karena itu refluks dengan HCl akan membantu meningkatkan kandungan SiO_2 pada campuran reaksi. Pada perlakuan asam, besi oksida yang ada pada abu layang akan larut sehingga dapat dihilangkan keberadaannya.

Selain itu pada saat refluks, abu layang mengalami dealuminasi (kadar Al menjadi rendah), sehingga meningkatkan rasio Si/Al.

2. Hasil Analisis Spektroskopi Inframerah

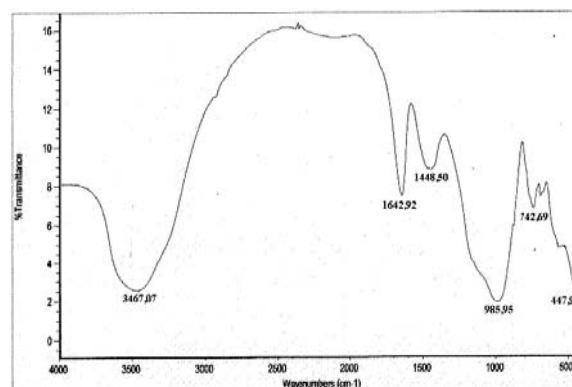
Spektra IR diperoleh dengan menggunakan FT IR Perkin Elmer pada bilangan gelombang 4000 – 400 cm^{-1} . Spektra inframerah dari abu layang tercantum pada Gambar 4. Spektra inframerah menghasilkan informasi struktur material yang sedang dipelajari.



Gambar 4. Spektra Inframerah abu layang

Dari Gambar 4 tersebut, memperlihatkan adanya pita-pita serapan yang muncul pada daerah 3431.1 cm^{-1} ; 1610.5 cm^{-1} ; dan 1047.3 cm^{-1} . Pita serapan yang muncul pada daerah 3431.1 cm^{-1} merupakan vibrasi OH rentangan, sedangkan pita serapan yang muncul pada daerah 1610.5 cm^{-1} merupakan vibrasi OH tekukan. Hal ini menunjukkan adanya ikatan hidrogen dalam molekul H_2O yang ada dalam abu layang. Untuk serapan 1047.3 cm^{-1} terjadi vibrasi rentangan asimetri Si-O atau Al-O dalam SiO_4 atau AlO_4 tetrahedral (1250 cm^{-1} – 950 cm^{-1}).

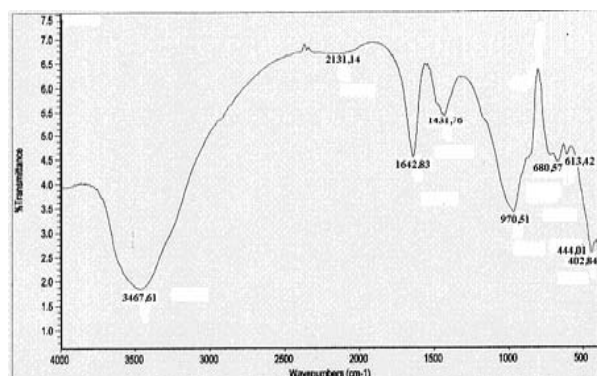
Berdasarkan difraktogram yang diperoleh seperti diuraikan sebelumnya, perubahan konsentrasi tidak memberikan perbedaan yang berarti, dibandingkan perubahan temperatur. Oleh karena itu dalam kajian spektra infra merah ini hanya akan disajikan dua spektra yaitu spektra dari produk hidrotermal pada temperatur 100°C (Gambar 5) dan 160°C (Gambar 6).



Gambar 5. Spektra inframerah produk hidrotermal yang diaktivasi larutan NaOH 3 M suhu 100°C

Gambar 5 memperlihatkan adanya pita-pita serapan yang muncul pada daerah 3467,07 cm^{-1} ; 1642,92 cm^{-1} ; 1448,50 cm^{-1} ; 985,95 cm^{-1} ; 742,69 cm^{-1} dan 437,47 cm^{-1} . Pita serapan pada daerah 3467,07 cm^{-1} menunjukkan adanya vibrasi rentangan O-H. Bilangan gelombang 985,95 cm^{-1} menunjukkan vibrasi rentangan asimetri Si-O atau Al-O dalam SiO_4

atau AlO_4 tetrahedral, serapan $742,69 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi rentangan simetri $\text{Si/Al} - \text{O}$ dan serapan $437,47 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi tekuk $\text{Si/Al} - \text{O}$. Pada spektra inframerah produk hidrotermal telah mengalami pergeseran dibandingkan dengan spektra inframerah abu layang. Dengan ditemukannya daerah serapan $402,84 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan bahwa produk hidrotermal mulai mengalami pembukaan pori sehingga produk hidrotermal lebih efektif kemampuan adsorpsinya dalam menurunkan kesadahan air.



Gambar 6. Spektra inframerah produk hidro-termal dengan larutan NaOH 2 M suhu 160°C

Gambar 6 memperlihatkan pita serapan yang muncul pada daerah $3467,07 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi rentangan O-H. Bilangan gelombang $985,95 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi rentang asimetri Si-O atau Al-O dalam SiO_4 atau AlO_4 tetrahedral, serapan $742,69 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi rentangan simetri $\text{Si/Al} - \text{O}$ dan serapan $437,47 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi tekuk $\text{Si/Al} - \text{O}$.

Pada spektra inframerah produk hidrotermal telah mengalami pergeseran dibandingkan dengan spektra inframerah abu layang. Dengan ditemukannya daerah serapan $402,84 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan bahwa produk hidrotermal mulai mengalami pembukaan pori sehingga produk hidrotermal lebih efektif kemampuan adsorpsinya dalam menurunkan kesadahan air.

Spektra yang dihasilkan (Gambar 5 dan 6) merupakan hasil overlap vibrasi dari fase abu layang dan kristal baru yang terbentuk. Secara umum spektra IR dapat dibagi menjadi dua kelompok vibrasi, yaitu (i) vibrasi internal framework TO_4 , yang intense terhadap vibrasi struktural dan (ii) vibrasi yang berhubungan dengan linkage eksternal unit TO_4 . Untuk material zeolit pita yang paling intense terjadi pada daerah $860 - 1230 \text{ cm}^{-1}$ dan $420 - 500 \text{ cm}^{-1}$ (Keka dkk, 2004). Pita absorbans antara bilangan gelombang $980 - 1320 \text{ cm}^{-1}$, menyatakan adanya atom Al tersubstitusi dalam bentuk tetrahedral dari framework silika. Pada 440 cm^{-1} merupakan mode bending Si(Al)-O dan $380 - 403 \text{ cm}^{-1}$ merupakan pembukaan pori (Mimura, 2001). Dari Gambar 5 nampak terjadi pergeseran dan pembentukan pita serapan baru, yaitu dari $1074,3$ menjadi $970,51$, 456 menjadi 441 cm^{-1} serta pembentukan pita pada $402,04$

cm^{-1} . Keka dkk, 2004 meringkas gambaran umum spektra IR dari zeolit seperti pada Tabel 3.

Tabel 3 Gambaran umum spektra IR dari zeolit

Mode vibrasi	Bilangan gelombang cm^{-1}
Internal tetrahedral	
Asymetric stretch	1250 – 950
Symetric stretch	720 – 650
T-O bend	420 - 500
External linkage	
Double ring	650 – 500
Pore opening	300 – 420
Symetric stretch	750 – 820
Asymetric stretch	1050 - 1150

Berdasarkan Tabel 3 dan Gambar 5 dapat dinyatakan bahwa perlakuan alkali hidrotermal terhadap abu layang batu bara dapat menghasilkan material yang mempunyai struktur mirip zeolit (*zeolit-like*). Dengan demikian terjadi perubahan struktur dan jenis kristal akibat aktivasi abu layang batu bara melalui proses alkali hidrotermal.

Kesimpulan dan Saran

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan sebelumnya dapat diambil kesimpulan sebagai berikut.

1. Proses alkali hidrotermal terhadap abu layang dapat mengubah komponen utama kuarsa dan fasa amorph menjadi material zeolit (*zeolit-like*), yang mengandung mineral sodalit, mullit dan zeolit P.
2. Konsentrasi NaOH dan temperatur proses hidrotermal berpengaruh terhadap karakteristik produk yang dihasilkan. Pada konsentrasi NaOH dan temperatur yang lebih tinggi terjadi peningkatan kristalinitas produk hidrotermal.
3. Proses alkali hidrotermal dapat menghasilkan intensitas fasa kristalin tertinggi pada konsentrasi NaOH 2M, temperatur 160°C dan waktu 72 jam.
4. Perlakuan awal dengan larutan HCl 1M dapat meningkatkan kristalinitas produk zeolit sintesis yang dihasilkan

Perlu dilakukan optimasi kondisi waktu reaksi, sehingga dihasilkan produk hidrotermal yang optimal.

Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Pembinaan Penelitian dan Pengabdian Masyarakat, Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi, Departemen Pendidikan Nasional yang membiayai penelitian ini dengan Surat Perjanjian Pelaksanaan Pekerjaan Nomor 016/SP3/PB/DP2M/II/2006 Tanggal 1 Februari 2006.

Daftar Pustaka

Anonim, (1997), "Research in Chemical Technology and Materials Science", Delft University of

Technology Netherlands.

Belardi, G., Massimilla, S., and Piga L., (1998), *Resour. Conserv. Recycl.*, 24. 167

Budiyantoro, Arief, (2005), "Konversi Abu Layang Batubara Sebagai Material Pengemban Logam Nikel dan Uji Ketahanan Struktur Padatan Terhadap Panas", *Jurnal Ilmu Dasar*

Chaerudin Darsa, (1995), "Pemanfaatan Limbah Abu Terbang PLTU Suralaya Untuk Campuran Beton", *Energi dan Listrik*, Vol. 3 : 37 – 46

EPA, (1988), "*Wastes from the Combustion of Coal by Electric Utility Power Plant*", US Environmental Protection Agency EPA/530-DW-8-002

Fukui K., Nishimoto T., Takiguchi M., Yoshida H., (2006), "Effect of NaOH Concentration Synthesis from Fly Ash with a Hydrothermal Treatment Method", *KONA*. 24. 2006

Herry P., (1993), "Abu Terbang dan Pemanfaatannya", *Makalah Seminar Nasional Batu Bara Indonesia*, UGM Yogyakarta 7 – 8 September 1993

Hessley, R.K., Reasoner J.W., dan Riley J.T., (1986), *Coal Science*, John Wiley and Sons, New York, 81 – 87

Jumaeri, (1995), "Studi Tentang Pemanfaatan Abu Layang Sebagai Adsorben Zat Waran Dalam Larutan Air", *Tesis*, Program Pasca Sarjana UGM Yogyakarta

Keka O, Narayan C.P, dan Amar N.S., (2004), "Zeolite from Fly Ash : Synthesis and Characterization", *Bull. Mater. Sci.*, vol 27 No 6, 555 – 564

Kumar P, Nawal M, Yasunori O, Kazuo Yand Tsuneji S., (2001), "Mesoporous Materials Prepared Using Coal Fly Ash as the Silicon and Aluminium Source", *J. Mater. Chem.* 11. 3285-3290

Mimura H, Kenji Y, Kenichi A and Yoshio O, (2001), "Alkali Hydrothermal Synthesis of Zeolites from Coal Fly Ash and Their Uptake Properties of Cesium Ion",

Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 38, No. 9, p. 766-772

Maulbetch, J.S. dan Murakka, I.P., (1983), "Coal Fired Power Plant Waste Management", *Environmental and Solid Waste*, 25 – 52

Nasrul A. dan Utama D., (1995), "Penelitian Penggunaan Abu Terbang Batu Bara untuk Bendungan RCC", *Energi dan Listrik* Vol. 3 : 19 – 34

Pungor, Erno, (1995), "*A Practical Guide to Instrumental Analysis*", New York: CRC Press

Querol, X., Natalia M, Juan C.U, Roberto, J., Susana H, Constantino FP, Carles A, Maria J, Javier G, Angel L and Diego C, (2001), "Fly Ash Zeolitization Product Applied to Waste Water and Flue Gas Decontamination", *Int. Ash Util. Symp, Center for Appl Eng. Res*, Univ. of Kentucky, paper 29.

Schubert, U dan Husing, N., (2000), "*Synthesis of Inorganic Materials*", Federal Republic of Germany. WILEY-VCH

Singh D.B, Prasad G., Rupainwar D.C dan Singh V.N., (1988), "As(III) Removal from Aqueous Solution by Adsorption", *J. Water, Air and Soil Pollution*, 42 : 373 – 386

Vucinic D, Miljavonic I, Rosic A and Lazic P, (2002), "Effect of Na₂O/SiO₂ mole Ratio on the Crystal Type of Zeolite Synthesized from Coal Fly Ash", *J. Serb. Chem. Soc.* 68 (6) 471-478

Woolard CD, Petrus K, dan M van der Horst, (2000), "The Use of a Modified Fly Ash as an Adsorbent for Lead", *Water SA* vol 26 No. 4 October, 531 – 536

Zhao X.S., Lu G.Q. and Zhu H.Y., (1997), "Effects of Ageing and Seeding on the Formation of Zeolite Y from Coal Fly Ash", *Journal of Porous Materials*, 4, 245–251, Kluwer Academic Publishers. Manufactured in The Netherlands

