

Karakteristik Kekerasan dan Struktur Kristal *Cordierite* Berbasis Silika Sekam Padi dengan Penambahan Alumina (0, 20, 25, dan 30 wt%)

Nindy Elyta Mawarty^{(1)*}, Simon Sembiring⁽¹⁾, Rudy T.M. Situmeang⁽²⁾

⁽¹⁾Jurusan Fisika FMIPA Universitas Lampung
Bandar Lampung 35145

⁽²⁾Jurusan Kimia FMIPA Universitas Lampung
Bandar Lampung 35145

*E-mail: elytanindy@gmail.com

Diterima (20 September 2017), Direvisi (5 Oktober 2017)

Abstract. The synthesis, phase structure and hardness analysis of cordierite ceramic has been done with addition of alumina 0, 20, 25, and 30wt%. Magnesium and alumina from Sigma-Aldrich has been used as raw materials while the silica was obtained from extraction of rice husk used 5% KOH and 10% HCl with sol gel method. This cordierite synthesis used solid state method and sintered at 1200°C for 3 hours. Hardness analysis was determined by Microhardness Tester while the phase structure was determined by X-Ray Diffraction (XRD). Hardness value that obtained for C_0 , C_{20} , C_{25} , and C_{30} were 50,03 : 52,44 : 35,69 : and 50,46 kgf/mm² repeatedly. It was proved that excess alumina will increase hardness value. The XRD patterns revealed that cordierite, corundum, spinel, cristoballite, and periclase were formed in the samples.

Keyword: cordierite, hardness, silica of rice husk, phase structure

Abstrak. Telah dilakukan sintesis dan karakteristik struktur fasa dan kekerasan *cordierite* dengan penambahan alumina sebanyak 0, 20, 25, dan 30wt%. sintesis *cordierite* menggunakan bahan MgO dan Al₂O₃ berasal dari Sigma-Aldrich sedangkan bahan silika berasal dari sekam padi yang diekstraksi menggunakan metode sol gel menggunakan larutan KOH 5% dan HCl 10%. Sintesis *cordierite* dilakukan dengan metode padatan dan disintering pada suhu 1200°C selama 3 jam. Pengujian kekerasan menggunakan alat *Microhardness Tester* dan untuk mengetahui struktur fasa menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD). Pada penelitian ini diperoleh nilai kekerasan sampel C_0 , C_{20} , C_{25} , dan C_{30} masing-masing adalah 50,03 : 52,44 : 35,69 : dan 50,46 kgf/mm². Nilai kekerasan ini semakin meningkat seiring dengan penambahan alumina. Hasil XRD menunjukkan fasa yang terbentuk yaitu *cordierite*, spinel, kristobalit, dan *periclase*.

Kata kunci: *Cordierite*, kekerasan, silika sekam padi, struktur fasa

PENDAHULUAN

Cordierite merupakan salah satu jenis keramik dengan rumus kimia 2MgO.2Al₂O₃.5SiO₂ yang memiliki nilai kekerasan yang tinggi yaitu 700 – 800 kgf/mm² [1]. *Cordierite* dapat diaplikasikan sebagai bahan *furnace* [2] karena *cordierite* merupakan bahan berefraktori tinggi.

Pembentukan *cordierite* dapat menggunakan metode padatan dan metode sol gel. *Cordierite* dengan metode padatan terjadi pada suhu 1350°C menggunakan bahan kaolin - alumina – *talc* [3], sedangkan *cordierite* dengan metode sol gel terjadi pada suhu 1300°C dengan bahan magnesium nitrat, aluminium nitra, TEOS, dan *fumed silica* [4]. Senyawa terbesar dalam pembentukan

cordierite adalah silika. Sumber silika antara lain *fumed silica*, kaolin, TEOS (*tetraethylorthosilicate*), TMOS (*tetramethylorthosilicate*), dan sekam padi. TEOS dan TMOS jarang digunakan karena harga yang relatif mahal dan sulit diperoleh. Salah satu sumber silika yang sering digunakan adalah sekam padi, hal ini dikarenakan mudah diekstraksi, harga yang relatif murah, dan mudah diperoleh dibandingkan sumber silika yang lainnya [5]. Kemurnian silika yang diperoleh dari hasil ekstraksi silika sekam padi mencapai 95% [6].

Penambahan oksida seperti alumina pada sintesis *cordierite* menghasilkan material paduan yang memiliki sifat dominan seperti sifat alumina tetapi termal ekspansi yang rendah seperti *cordierite* [7]. Keramik alumina tunggal memiliki titik lebur yang tinggi yaitu 2000°C dan kekerasan yang tinggi yaitu 1120 – 1950 kgf/mm² [8]. Sijabat [7] menunjukkan semakin besar penambahan komposisi alumina pada paduan *cordierite* – alumina akan meningkatkan nilai kekerasan. *Cordierite* – Al₂O₃ terbentuk struktur γ – Al₂O₃ pada nilai 2 θ yaitu 45,80° dan 66,9° serta struktur *cordierite* pada 2 θ yaitu 10,4° dan 29,6° [9]. Penelitian [10] penambahan alumina 10% menyebabkan kenaikan nilai porositas dan penambahan alumina 30% hanya meningkatkan sedikit nilai porositas tetapi tidak mengubah nilai densitas.

Pada penelitian ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh penambahan alumina terhadap karakteristik kekerasan dan struktur fasa *cordierite* berbasis silika sekam padi. Penambahan alumina pada *cordierite* sebesar 0, 20, 25, dan 30 % berat. Karakteristik kekerasan dianalisis menggunakan alat *Microhardness Tester*. Analisis kualitatif struktur kristal menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) dan analisis kuantitatif menggunakan program *Rietveld*.

METODE PENELITIAN

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia Instrumentasi FMIPA Universitas Lampung, Balai Besar Pasca Panen (BBPP) Bogor, dan Laboratorium Gedung 42 BATAN Serpong. Bahan yang digunakan yaitu aluminium oksida (Al₂O₃) SIGMA-ALDRICH *product of germany* (11028, 500G), magnesium oksida (MgO) SIGMA-ALDRICH (63093-250G-F), sekam padi, larutan KOH 5%, larutan HCl 10%, alkohol dan aquades. Alat yang digunakan antara lain *microhardness tester*, XRD, *press hidrolis*, *magnetic stirrer*, *furnace*, *oven*, mortar dan pastel, serta ayakan 63 μ m.

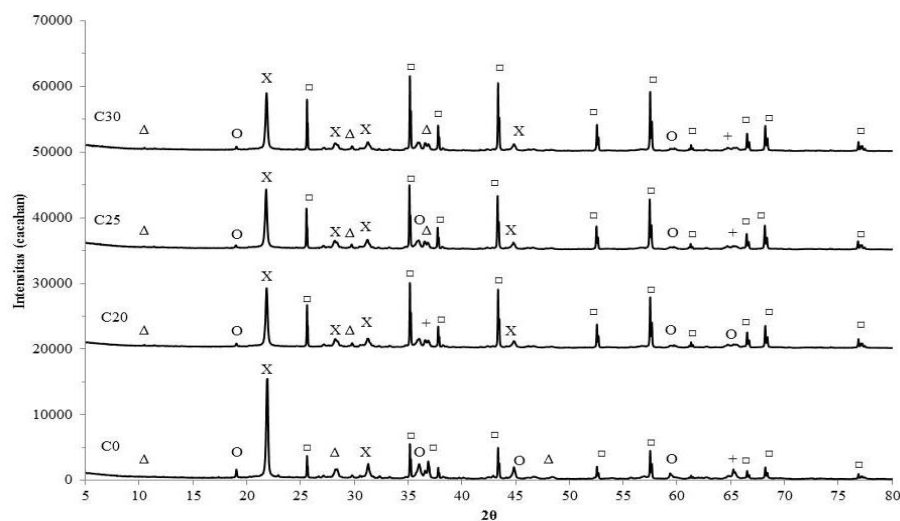
Untuk mendapatkan silika, sekam padi diekstraksi menggunakan larutan KOH 5% selama 30 menit dan disaring untuk mendapatkan sol silika. Sol silika didiamkan selama 24 jam, kemudian ditetesi dengan larutan HCl 10% hingga terbentuk gel silika berwarna coklat. Gel dibersihkan menggunakan air hangat, selanjutnya dicuci menggunakan larutan pemutih hingga diperoleh gel silika berwarna putih. Gel silika putih dioven dengan suhu 110°C selama 7jam hingga diperoleh silika padatan. Silika padatan digerus dan diayak hingga didapatkan serbuk silika berbasis sekam padi.

Pembentukan *cordierite* dengan metode padatan. Bahan-bahan seperti MgO, Al₂O₃, dan SiO₂ ditimbang dengan perbandingan berat yaitu 14% : 34% : 52%. Ketiga bahan tersebut dicampur dan digerus hingga homogen menggunakan mortar dan pastel selama 3 jam kemudian diayak menggunakan ayakan ukuran 63 μ m.

Bubuk *cordierite* selanjutnya ditambah alumina (Al₂O₃) dengan variasi penambahan 0, 20, 25, dan 30 % berat. Komposisi pencampuran *cordierite* – alumina ditunjukkan pada **Tabel 1**.

Tabel 1. Komposisi pencampuran *cordierite*– alumina.

Kode sampel	Variasi penambahan (% berat)	Massa Cordierite (gram)	Massa Alumina (gram)
C0	0	40	0
C20	20	32	8
C25	25	30	10
C30	30	28	12

**Gambar 1.** Difraktogram XRD sampel C₀, C₂₀, C₂₅, dan C₃₀.

Bubuk paduan *cordierite* – alumina dicampur menggunakan *magnetic stirrer* dengan media larutan alkohol. Bahan kemudian dicetak (*pelleting*) menggunakan *press hidrolic* dan disinter dengan suhu 1300°C selama 3 jam.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis Kualitatif XRD

Untuk mengetahui struktur fasa pada sampel maka dilakukan metode pencocokan melalui program PCPDFWIN 1997. Metode ini dilakukan dengan mencocokkan data eksperimen dengan data standar yang terdapat pada PCPDFWIN. Difraktogram hasil XRD sampel dapat dilihat pada **Gambar 1**.

Berdasarkan **Gambar 1** terlihat bahwa puncak-puncak fasa yang muncul adalah *cordierite* (Δ), spinel (O), *periclase* (+), korundum (□), dan kristobalit (X). Puncak fasa kristobalit (PDF 39-1425) terbentuk pada $2\theta = 21,8^\circ$, fasa korundum (PDF 46-1212) terbentuk pada $2\theta = 35,1^\circ$, fasa spinel (PDF 21-1152) terbentuk pada $2\theta = 35,8^\circ$, fasa *cordierite* (PDF 13-0294) terbentuk pada $2\theta = 10,5^\circ$, serta fasa *periclase* (PDF 45-0946) yang terbentuk pada nilai $2\theta = 64,4^\circ$. Hal ini sesuai dengan penelitian Sembiring dan Manurung [11] yang menunjukkan fasa yang terbentuk pada hasil XRD yaitu fasa korundum, fasa *cordierite*, fasa spinel, fasa *periclase*, dan fasa kristobalit.

Fasa *cordierite* terjadi karena interaksi termal antara magnesium oksida, aluminium

oksida, dan silika berbasis silika sekam padi, sesuai dengan penelitian [12] yang menyatakan bahwa energi termal yang diberikan cukup untuk mereaksikan bahan-bahan pembentuknya. Fasa *cordierite* mempunyai sistem kristal ortorombik dengan parameter sel $a = 16,902\text{\AA}$, $b = 9,703\text{\AA}$, $c = 9,332\text{\AA}$ serta $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ [13].

Fasa kristobalit terbentuk dari silika berbasis sekam padi yang belum bereaksi seluruhnya dengan bahan pembentuk *cordierite* lainnya, sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Naskar & Chatterjee (2004) dimana mensintesis *cordierite* diikuti dengan pembentukan fasa kristobalit. Kristobalit memiliki sistem kristal tetragonal dimana memiliki parameter sel $a = b = 5,0072\text{\AA}$ dan $c = 6,988\text{\AA}$ serta $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$.

Terbentuknya fasa korundum karena interaksi antara alumunium dan oksigen yang berasal dari bahan sintesis *cordierite* dengan metode padatan [14]. Sistem kristal korundum adalah heksagonal yang memiliki parameter sel $a = b = 4,75971\text{\AA}$ dan $c = 12,9936\text{\AA}$ serta $\alpha = \beta = 90^\circ$ dan $\gamma = 120^\circ$ [15].

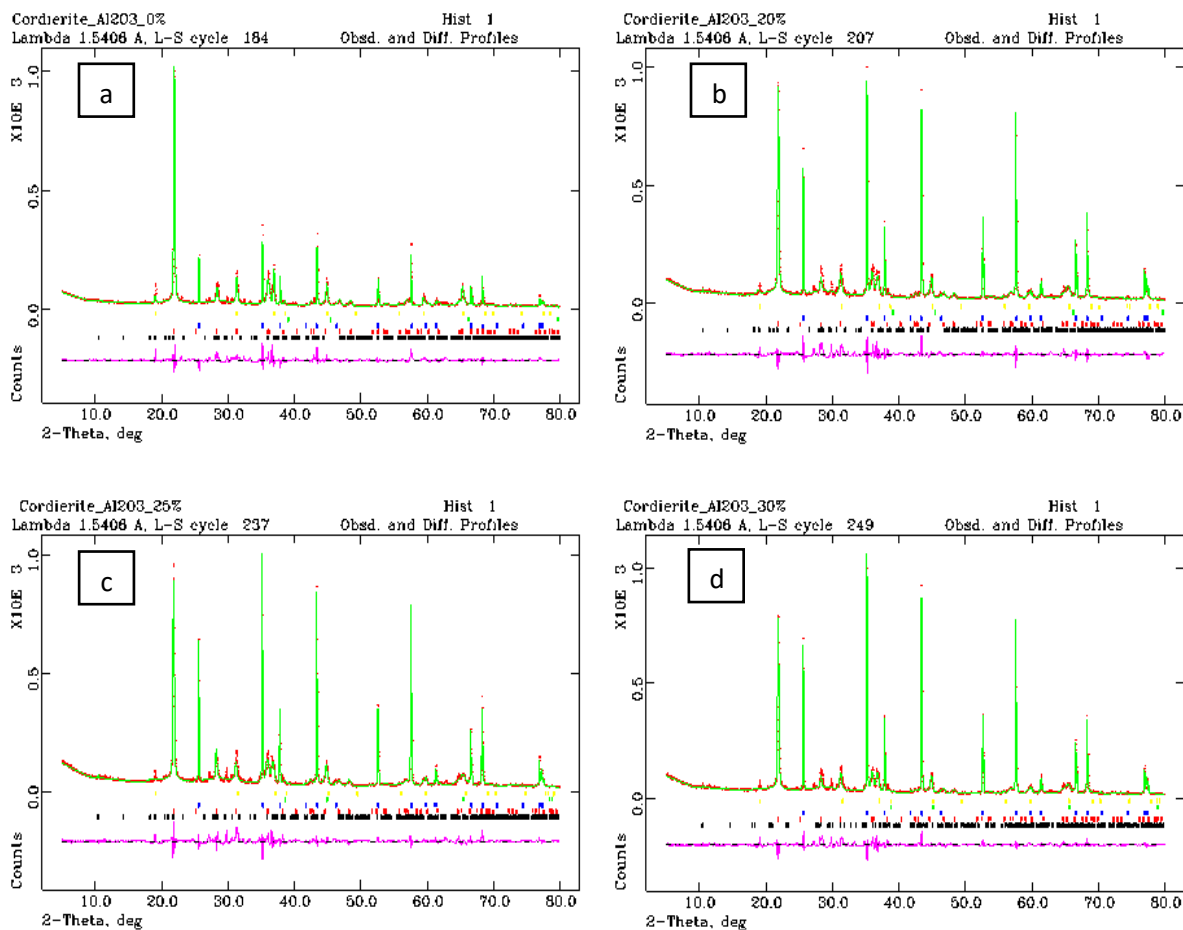
Fasa spinel terbentuk karena interaksi antara alumunium oksida dan magnesium oksida yang membentuk gugus fungsi O-Al-O, O-Mg-O, dan O-Al-O-Mg-O. Fasa spinel mempunyai sistem kristal kubik dengan parameter sel $a = b = c = 8,089\text{\AA}$ dan $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ [16]. Fasa *periclase* terbentuk melalui pembentukan gugus fungsi Mg-O. *Periclase* mempunyai sistem kristal kubik dengan parameter sel $a = b = c = 3,992\text{\AA}$ serta $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$.

Analisis Kuantitatif Metode Rietveld

Analisis kuantitatif XRD dilakukan dengan metode Rietveld. Pola difraksi hasil *refinement* sampel C_0 , C_{20} , C_{25} , dan C_{30} disajikan pada **Gambar 2**.

Berdasarkan **Gambar 2** diketahui bahwa garis berwarna hijau menunjukkan data pengamatan, garis berwarna merah menunjukkan data perhitungan, garis berwarna ungu menunjukkan selisih antara data pengamatan dan data perhitungan, serta garis-garis kecil berwarna menunjukkan fasa yang terbentuk. Selisih antara data data pengamatan dan data perhitungan sangat kecil yang mengindikasikan bahwa hasil *refinement* sampel mendekati sempurna dikarenakan puncak-puncak garis merah masih ada yang melebihi atau kurang sama dengan puncak-puncak garis hijau. Hasil *refinement* menunjukkan fraksi massa tiap stuktur kristal pada setiap sampel yang disajikan pada **Tabel 2**.

Tabel 2 menunjukkan dengan penambahan alumina pada *cordierite* akan meningkatkan fasa korundum yaitu sebesar 39,86 wt% (C_0) menjadi 68,68 wt% (C_{30}) tetapi menurunkan fasa kristobalit yaitu 25,27 wt% (C_{20}) menjadi 22,50 wt% (C_{30}). Hal ini sesuai dengan penelitian [10] yang menyatakan penambahan alumina akan meningkatkan fasa korundum pada penambahan alumina 10% hingga 30% tetapi menurunkan fasa lain pada penambahan 0% hingga 30%. Hasil penghalusan terhadap semua sampel, diperoleh data keluaran yang menunjukkan tingkat kesesuaian antara data pengamatan dan data perhitungan (*profile figures of merit*) yang dinyatakan dengan R_{exp} (%), R_{wp} (%), R_p (%), dan GOF pada **Tabel 3**.



Gambar 2. Pola difraksi hasil refinement (a) sampel C₀; (b) sampel C₂₀; (c) sampel C₂₅; (d) sampel C₃₀

Tabel 2. Fraksi Massa

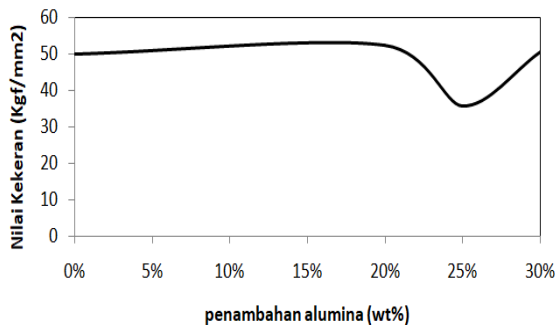
Kode Sampel	Fraksi Massa (wt%)				
	Kristobalit	Cordierite	Spinel	Korundum	Periclase
C ₀	46,93	0,03	8,65	39,86	4,53
C ₂₀	25,27	0,33	5,33	65,64	3,44
C ₂₅	28,17	0,32	5,71	63,13	2,67
C ₃₀	22,50	0,41	5,53	68,68	2,88

Tabel 3. Profile figures of merit

Kode Sampel	R _{exp} (%)	R _p (%)	R _{wp} (%)	GOF
C ₀	13,32	10,07	13,77	1,069
C ₂₀	11,31	8,56	11,72	1,071
C ₂₅	10,61	7,92	10,92	1,059
C ₃₀	10,5	7,67	10,79	1,055

Tabel 4. Hasil pengukuran nilai kekerasan

Kode Sampel	d ₁ (mm)	d ₂ (mm)	d _π (mm)	d _π ² (mm ²)	Angka HVN (kgf/mm ²)
C ₀	4,256	4,256	0,1064	0,011384	50,02641
C ₂₀	4,12	4,12	0,103	0,010609	52,4385
C ₂₅	5,01	5,01	0,12525	0,015718	35,68804
C ₃₀	4,2	4,2	0,105	0,011025	50,45986



Gambar 3. Grafik pengukuran nilai kekerasan

Berdasarkan **Tabel 3** diketahui hasil penghalusan dari penelitian berkisar 1,055 - 1,071, menunjukkan kesesuaian yang relatif signifikan dengan nilai GOF atau $\chi^2 \leq 4$. Selain itu, diketahui juga nilai R_{wp} (%) berkisar 10,79 – 13,77, menunjukkan tingkat kesesuaian sesuai dengan referensi yaitu R_{wp} (%) ≤ 20 (Kisi, 1994). Hasil selisih antara data pengamatan dan data perhitungan diperoleh secara bervariasi hal ini disebabkan karena beberapa nilai faktor skala yang belum tepat.

Kekerasan

Uji kekerasan yang dilakukan dalam penelitian ini menggunakan alat *microhardness tester* dengan metode *vickers hardness* dengan beban awal 0,3 kgf. Grafik hasil pengukuran nilai kekerasan diperlihatkan pada Gambar 3 dan tabel hasil pengukuran nilai kekerasan diperlihatkan pada **Tabel 4**.

Gambar 3 diketahui bahwa nilai kekerasan mengalami kenaikan pada sampel C₀ hingga C₂₀ namun mengalami penurunan pada sampel C₂₅ yang kembali mengalami peningkatan pada sampel C₃₀. Peningkatan nilai kekerasan sesuai dengan terjadinya

peningkatan densitas sampel C₀ yaitu 1,47 gr/cm³ hingga C₂₀ yaitu 1,53 gr/cm³.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil dan pembahasan, dapat disimpulkan bahwa hasil nilai kekerasan sampel meningkat pada sampel C₀ hingga C₂₀, kemudian mengalami penurunan pada sampel C₂₅ dan meningkat kembali pada sampel C₃₀. Hasil XRD pada sampel C₀ didominasi oleh fasa kristobalit yang diikuti oleh fasa korundum, sedangkan pada sampel C₂₀ hingga C₃₀ didominasi oleh fasa korundum yang diikuti oleh fasa kristobalit. Hasil penghalusan sampel diperoleh nilai χ^2 untuk sampel C₀, C₂₀, C₂₅, dan C₃₀ masing-masing sebesar 1,069, 1,071, 1,059, dan 1,055.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada dosen pembimbing penelitian, Kepala Laboratorium Fisika Material FMIPA Universitas Lampung, Kepala Laboratorium Kimia Instrumentasi FMIPA Universitas Lampung, Balai Besar Pasca Panen (BBPP) Bogor dan Batan Tenaga Nuklir (BATAN) Serpong.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] C. A. Harper, *Handbook Of Ceramics, Glasses, And Diamond*. USA: Mc Grow-Hill Companies, 2001.

- [2] M. H. Lin and M. C. Wang, "Crystallization Behaviour Of B-Spodumene In The Calcination Of $\text{Li}_2\text{O-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-ZrO}_2$ Gels," *J. Mater. Sci.*, vol. 30, no. 10, pp. 2716–2721, 1995.
- [3] S. Kurama and H. Kurama, "The Reaction Kinetics Of Rice Husk Based Cordierite Ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 34, no. 2, pp. 269–272, 2008.
- [4] M. K. Naskar and M. Chatterjee, "A Novel Process For The Synthesis Of Cordierite ($\text{Mg}_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$) Powders From Rice Husk Ash And Other Sources Of Silica And Their Comparative Study," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 24, no. 13, pp. 3499–3508, 2004.
- [5] A. A. M. Daifullah, N. S. Awwad, and S. A. El-Reefy, "Purification Of Wet Phosphoric Acid From Ferric Ions Using Modified Rice Husk," *Chem. Eng. Process. Process Intensif.*, vol. 43, no. 2, pp. 193–201, 2004.
- [6] V. Della, I. Kuhn, and D. Hotza, "Rice Husk Ash As An Element Source For Active Silica Production," *Mater. Lett.*, vol. 57, no. 4, pp. 818–821, 2002.
- [7] K. Sijabat, *Pembuatan Keramik Paduan Cordierite ($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$) - Alumina (Al_2O_3) Sebagai Bahan Refraktori Dan Karakteristiknya*. Medan: Universitas Sumatera Utara, 2007.
- [8] R. H. Doremus, D. J. Duval, S. H. Risbud, J. F. Shackelford, R. C. Bradt, M. C. Wilding, L. P. Davila, J. D. Smith, W. G. Fahrenholtz, Mariano Velez, Julie M. Schoenung, and O. A. Graeve, *Ceramic and Glass Materials*. 2008.
- [9] T. Wang, S. Yang, K. Sun, and X. Fang, "Preparation Of Pt/Beta Zeolite- Al_2O_3 /Cordierite Monolith For Automobile Exhaust Purification," *Ceram. Int.*, vol. 37, no. 2, pp. 621–626, 2011.
- [10] S. A. M. Abdel-Hameed and I. M. Bakr, "Effect Of Alumina On Ceramic Properties Of Cordierite Glass-Ceramic From Basalt Rock," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 27, no. 2–3, pp. 1893–1897, 2007.
- [11] S. Sembiring and P. Manurung, "Synthesis And Characterisation Of Cordierite ($\text{Mg}_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$) Ceramics Based On The Rice Husk Silica," 2009, no. 11, pp. 16–17.
- [12] S. Sembiring, W. Simanjuntak, R. Situmeang, A. Riyanto, and K. Sebayang, "reparation Of Refractory Cordierite Using Amorphous Rice Husk Silica For Thermal Insulation Purposes," *Ceram. Int.*, vol. 42, no. 7, pp. 8431–8437, 2016.
- [13] J. Koepke and H. Schulz, "Single Crystal Structure Investigations Under High-Pressure Of The Mineral Cordierite With An Improved High-Pressure Cell," *Phys. Chem. Miner.*, vol. 13, no. 3, pp. 165–173, 1986.
- [14] E. Yalamaç, "Preparation of Fine Spinel and Cordierite Ceramic Powders by Mechano-chemical Techniques," *Diss. Master Sci.*, 2004.
- [15] L. W. Finger and R. M. Hazen, "Crystal Structure And Compression Of Ruby To 46 Kbar," *J. Appl. Phys.*, vol. 49, no. 12, pp. 5823–5826, 1978.
- [16] H. Sawada, "An Electron Density Residual Study Of Magnesium Aluminum Oxide Spinel," *Mater. Res. Bull.*, vol. 30, no. 3, pp. 341–345, 1995.

Nindy dkk.: Karakteristik Kekerasan dan Struktur Kristal Cordierite Berbasis Silika Sekam Padi dengan penambahan alumina (0, 20, 25, dan 30 wt%)