

Preparasi Alumina Dengan Metode Elektrokimia Sebagai Bahan Baku Pembuatan Zeolit Sintetik dan Karakterisasinya Dengan Transmission Electron Microscopy (TEM)

Putri Hanifah Liani¹⁾, Simon Sembiring²⁾, dan Wasinton Simanjuntak³⁾

¹⁾ Mahasiswa Jurusan Fisika FMIPA Unila, ²⁾ Dosen Jurusan Fisika FMIPA Unila, ³⁾ Dosen Jurusan Kimia FMIPA Unila.
Jl. Sumantri Brojonegoro 1, Bandar Lampung 35144.
E-mail: putri_hanifah12@yahoo.com

Diterima (28 Februari 2014), direvisi (02 Juni 2014)

Abstract. In this study, preparation of alumina was carried out using electrochemical method with aluminium rods as electrodes and distilled water acidified to pH = 5 using HNO₃ 10% solution as electrolyte. Electrochemical process was conducted at potential of 22, for 24 hours to ensure the production of alumina in sufficient amount. The alumina was then filtered out and subsequently oven dried at 100 °C for 6 hours. Dried alumina was ground into powder and then characterized using Transmission Electron Microscopy (TEM) for particle size measurement. The result obtained indicated that the alumina consists of the particles with different sizes, ranging between 59 to 230 nm, with the average size of 137 nm.

Keywords. Alumina, electrochemical, TEM, particle size.

Abstrak. Pada penelitian ini, dilakukan preparasi alumina menggunakan metode elektrokimia dengan bahan baku batang aluminium dan aquades yang diasamkan hingga pH = 5, dengan HNO₃ 10% sebagai elektrolit. Proses elektrokimia dilakukan pada potensial 22 Volt selama 24 jam untuk mendapatkan alumina dalam jumlah yang cukup. Alumina selanjutnya disaring lalu dikeringkan dalam oven pada suhu 100 °C selama 6 jam. Alumina kering digerus hingga menjadi bubuk dan dikarakterisasi menggunakan *Transmission Electron Microscopy* (TEM) untuk mengetahui ukuran partikelnya. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa partikel alumina memiliki ukuran yang berbeda, dengan rentang dari 59 hingga 230 nm, dan ukuran rata-rata partikel sebesar 137 nm.

Kata Kunci. Alumina, elektrokimia, TEM, ukuran partikel.

PENDAHULUAN

Alumina (Al₂O₃) merupakan salah satu senyawa penting dalam ilmu material karena dibutuhkan dalam berbagai bidang yang berkaitan dengan material, antara lain sebagai adsorben (Kim, *et.al.*, 2005), katalis (Davis, 2010; Kim, *et.al.*, 2005; Wicakso, 2011), keramik (Davis, 2010), komponen

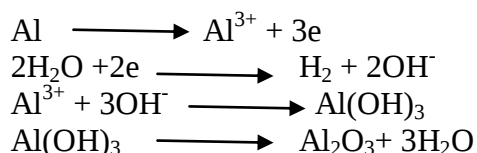
suhu tinggi dalam perangkat energi nuklir (XU, *et.al.*, 2012), dan produksi zeolit sintetik (Davis, 2010). Untuk memenuhi kebutuhan di atas, dewasa ini alumina telah dihasilkan dari berbagai bahan baku dan metode. Bahan baku pembuatan alumina yang biasa digunakan adalah alkoksida logam seperti aluminium alkoksida dan garam aluminium seperti aluminium nitrat, aluminium triisopropilat dan aluminium sec-butoksida dengan menggunakan beberapa macam metode seperti metode

*Corresponding author:

E-mail: putri_hanifah12@yahoo.com

sol-gel (Mahmoudi, *et.al.*, 2012; Rogoan, *et.al.*, 2011), *microwave sintering* (Leveuvre, *et.al.*, 2010) dan metode hidrolisis (Fujiwara, *et.al.*, 2007).

Berkaitan dengan pembuatan alumina, metode lain yang potensial untuk diteliti adalah metode elektrokimia. Metode ini merupakan metode yang potensial dikarenakan murah, mudah serta tidak memproduksi limbah sebagai hasil sampingannya karena menggunakan batang alumunium langsung. Prinsip utama yang mendasari metode elektrokimia ini adalah reaksi oksidasi logam alumunium secara elektrokimia sesuai dengan persamaan reaksi:

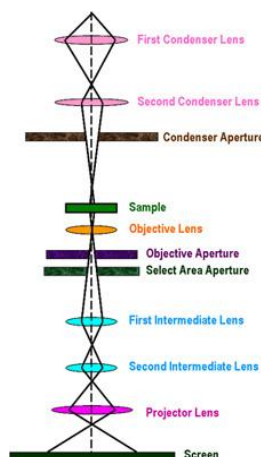


Sesuai dengan reaksi di atas, ion Al^{3+} dihasilkan oleh reaksi oksidasi elektroda yang digunakan sebagai anoda (elektroda tumbal). Di katoda, berlangsung reaksi reduksi air menghasilkan ion hidroksil yang selanjutnya bereaksi dengan ion Al^{3+} membentuk endapan $\text{Al}(\text{OH})_3$. Produk ini selanjutnya akan mengalami dimerisasi menghasilkan Al_2O_3 dan H_2O . Salah satu sifat utama proses elektrokimia adalah adanya sejumlah variabel yang menentukan berlangsungnya proses. Variabel utama adalah potensial dan pH, yang artinya jumlah ion Al^{3+} yang dihasilkan akan sangat tergantung pada besarnya potensial dan pH sampel dimana proses elektrokimia dilakukan.

Berdasarkan latar belakang di atas, dalam penelitian ini dipelajari pembuatan alumina dengan metode elektrokimia dengan menggunakan batangan alumunium. Percobaan dilakukan pada pH 5 dan potensial 22 Volt. Alumina yang diperoleh selanjutnya dikarakterisasi dengan TEM untuk melihat ukuran partikel alumina yang dihasilkan.

Salah satu karakteristik utama suatu bahan material adalah ukuran partikelnya. Ukuran partikel material dapat diketahui dengan menggunakan karakterisasi *Particle Size Distribution Analysis* (PSDA) dan *Transmission Electron Microscopy* (TEM). Metode PSDA dapat menentukan distribusi partikel material namun tidak dapat menentukan ukuran partikel tunggal. Untuk partikel tunggal, penentuan ukuran partikel umumnya dilakukan dengan TEM.

TEM pada dasarnya adalah spektroskopi elektron yang akan menghasilkan signal tertentu jika bahan dikenai oleh arus elektron berenergi tinggi. Berkas elektron tersebut kemudian difokuskan menggunakan lensa kondensor untuk menuju sampel. Ketika berkas elektron mengenai sampel, maka berkas tersebut akan ada yang dipantulkan, diserap maupun ditransmisikan. Berkas elektron yang ditransmisikan inilah yang digunakan dalam karakterisasi TEM. Untuk dapat mentransmisikan berkas elektron, sampel yang digunakan harus sangat tipis ($\sim 100 - 500 \text{ nm}$). Setelah mengenai sampel, berkas elektron yang muncul akibat transmisi difokuskan pada lensa objektif serta melalui lensa *intermediate* dan lensa proyektif hingga akhirnya menghasilkan gambar. Secara skematis, perangkat TEM disajikan dalam **Gambar 1**.



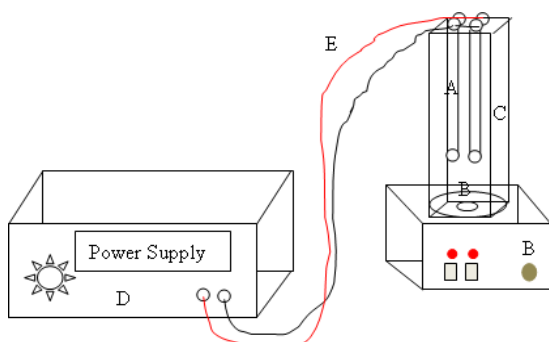
Gambar 1. Skema dasar instrumen TEM (Dong, 2014)

METODE PENELITIAN

Secara garis besar, penelitian ini mencakup dua tahap kegiatan, yakni preparasi alumina dengan metode elektrokimia dan karakterisasi alumina yang didapatkan dengan TEM, untuk melihat ukuran partikel alumina yang didapatkan. Percobaan elektrokimia dilakukan dengan perangkat seperti ditunjukkan dalam **Gambar 2**.

Proses elektrokimia dilakukan menggunakan aquades yang diasamkan hingga memiliki pH = 5 sebagai larutan elektrolit. Sebanyak 2000 mL elektrolit ditempatkan dalam reaktor (bagian C dalam **Gambar 2**). Reaktor selanjutnya dirangkai dengan menempatkan dua batang alumunium sebagai katoda dan dua batang sebagai anoda, kemudian elektroda dihubungkan dengan catu daya. Perangkat ditempatkan di atas pengaduk magnetik. Untuk menjalankan proses elektrokimia, potensial diatur menjadi 22 Volt pada catu daya, lalu elektrolisis dilakukan selama 24 jam sambil diaduk dengan pengaduk magnetik.

Setelah percobaan, alumina yang terbentuk dipisahkan dengan cara disaring kemudian dikeringkan dalam oven pada



Gambar 2. Perangkat yang digunakan dalam proses elektrokimia

Keterangan gambar:

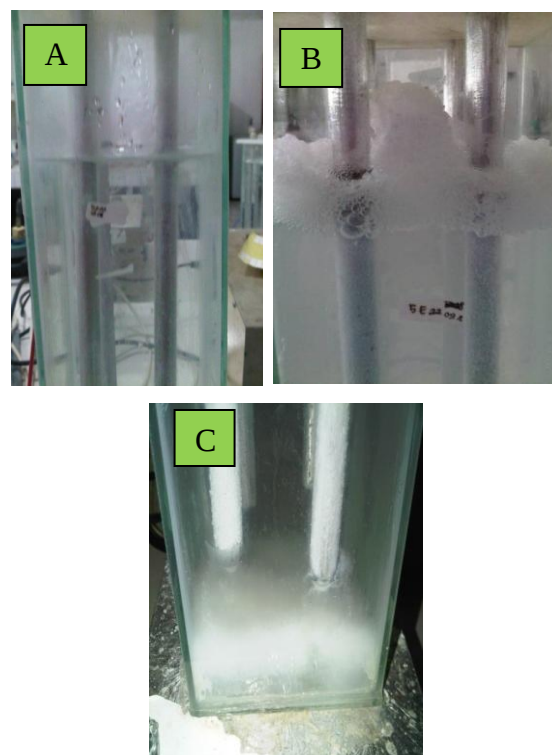
- A = Batang alumunium.
- B = Pengaduk magnetik.
- C = Reaktor.
- D = Catu daya.

suhu 100 °C selama 6 jam. Alumina kering selanjutnya digerus untuk mendapatkan alumina bubuk yang selanjutnya dikarakterisasi dengan TEM.

Karakterisasi dengan TEM dilakukan menggunakan instrumen JEM-1400 dengan potensial akselerasi 120 Volt, perbesaran 40.000, dan skala ukuran partikel 100,0 nm. Karakterisasi ini dilakukan di Laboratorium Anorganik, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta.

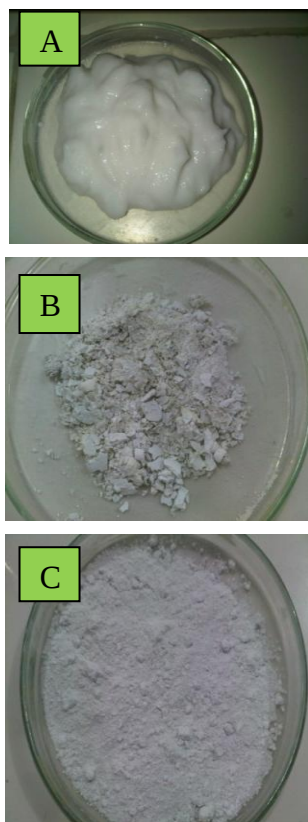
HASIL DAN PEMBAHASAN

Berlangsungnya proses elektrokimia untuk pembentukan alumina ditunjukkan dalam **Gambar 3**. **Gambar 3a** merupakan sampel sebelum proses elektrokimia dimulai, sedangkan **Gambar 3b** dan **3c** adalah gambar yang menunjukkan alumina yang sudah terbentuk setelah proses dijalankan selama 24 jam.



Gambar 3. Proses Elektrokimia: (a). Awal proses elektrokimia, (b). Gumpalan alumina pada permukaan reaktor setelah proses elektrokimia, (c). Endapan alumina setelah proses elektrokimia.

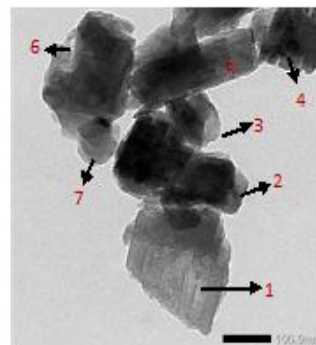
Berdasarkan **Gambar 3** di atas, terlihat bahwa pada awal proses elektrokimia larutan elektrolit masih bening dan belum ada alumina yang terbentuk. Setelah proses elektrokimia berlangsung selama 24 jam didapatkan alumina yang terapung, melayang, dan tenggelam. Alumina yang terapung berbentuk gumpalan busa yang terjadi akibat adanya reaksi hidrolisis air pada katoda yang menghasilkan gas H_2 sehingga membawa alumina ke permukaan reaktor. Sementara itu, alumina yang melayang tampak seperti terlarut sehingga membuat larutan elektrolit berwarna putih susu dan endapan alumina terjadi akibat adanya gumpalan-gumpalan alumina di sekitar batang alumunium yang menumpuk hingga akhirnya tenggelam di dasar reaktor. Alumina hasil elektrokimia juga masih ada yang menempel di batang alumunium yang bertidak sebagai katoda sedangkan pada anoda tidak terdapat alumina yang menempel.



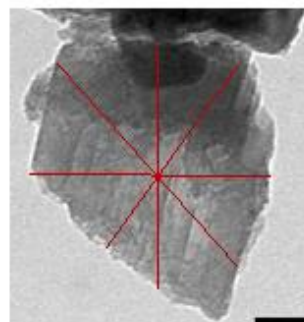
Gambar 4. Hasil elektrokimia: (a). alumina basah, (b). alumina kering, (c). alumina bubuk.

Alumina yang terbentuk selanjutnya dipisahkan dengan cara disaring sehingga didapatkan endapan alumina seperti ditunjukkan dalam **Gambar 4a**. Secara visual, terlihat alumina yang dihasilkan berwarna putih sesuai dengan warna alami alumina dan memiliki tekstur yang lembut. Alumina basah ini selanjutnya dikeringkan dalam oven pada suhu $100^{\circ}C$ sehingga didapatkan alumina kering seperti terlihat dalam **Gambar 4b**. Alumina kering kemudian digerus untuk mendapatkan alumina bubuk seperti terlihat pada **Gambar 4c**.

Mikrograf sampel yang dihasilkan dari analisis dengan TEM serta cara pengukuran partikel disajikan dalam **Gambar 5**, yang menunjukkan bahwa, sampel terdiri dari partikel dengan bentuk dan ukuran yang berbeda. Dalam gambar di atas dapat dilihat adanya 7 partikel dengan bentuk dan ukuran yang berbeda. Pengukuran ukuran partikel dilakukan menggunakan cara seperti ditunjukkan dalam **Gambar 6**.



Gambar 5. Mikrograf TEM sampel alumina yang dihasilkan.



Gambar 6. Cara pengukuran ukuran partikel.

Pengukuran ukuran partikel dilakukan dengan cara menarik empat buah garis secara horizontal, vertikal dan diagonal. Panjang dari masing-masing garis diukur kemudian dirata-ratakan lalu dibandingkan dengan panjang skala dan dikali dengan nilai skala yang digunakan. Misalnya untuk partikel 1 (pada Gambar 5) panjang masing-masing garis horizontal, vertical dan kedua diagonalnya adalah 2,5, 2,4, 2,4, dan 2,8 cm sehingga menghasilkan rata-rata panjang garis sebesar 2,525 cm. Data ini kemudian dibandingkan dengan panjang skala sebesar 1,1 cm dan dikali dengan nilai skala yang digunakan yakni 100 nm. Dari data ini, dihitung ukuran partikel dengan persamaan di bawah ini:

$$\begin{aligned} \text{Ukuran Partikel} &= \frac{2,525 \text{ cm}}{1,1 \text{ cm}} \times 100 \text{ nm} \\ &= 229,54 \text{ nm} \end{aligned}$$

Cara yang sama dilakukan untuk menghitung ukuran partikel lainnya dan hasilnya dirangkum dalam **Tabel 1**. Berdasarkan data yang disajikan dalam **Tabel 1**, terlihat bahwa ukuran partikel alumina yang dihasilkan masih dalam ukuran mikrometer dan bukan nanometer seperti yang diharapkan. Ketidaksesuaian hasil yang didapatkan dengan yang diharapkan menunjukkan bahwa kondisi elektrokimia yang diterapkan belum tepat untuk menghasilkan alumina dengan ukuran nano.

Tabel 1. Ukuran partikel dari masing-masing partikel.

Partikel	Ukuran (nm)
1	229,54
2	204,54
3	70,45
4	123,86
5	115,91
6	156,82
7	59,09
Jumlah	960,21
Rata-rata	137,17

Karakterisasi alumina dengan TEM juga telah dilakukan oleh beberapa peneliti. Rogojan, *et.al* (2011) menentukan ukuran partikel alumina yang dibuat dari bahan baku alumunium klorida dan alumunium triisopropilate dengan metode sol-gel serta dikarakterisasi menggunakan TEM. Hasil penelitian menunjukkan partikel alumina yang dibuat dari bahan baku alumunium klorida terdiri dari dua jenis geometri dengan ukuran partikel yang berbeda yakni partikel berbentuk jarum dengan rata-rata ukuran partikel dibawah 25 nm dan partikel berbentuk bulat dengan rata-rata ukuran partikel lebih kecil dari 20 nm. Alumina yang terbuat dari alumunium triisopropilate diketahui juga menunjukkan bahwa serbuk alumina terdiri dari gumpalan yang berbentuk acicular dengan rata-rata ukuran partikel lebih kecil dari 15 nm. Dalam penelitian tersebut, alumina dikarakterisasi setelah dikalsinasi pada suhu 1000 °C selama 2 jam.

Dalam penelitian lain, Cava, *et.al* (2007) juga melakukan penentuan ukuran partikel alumina yang dibuat dari campuran amonium alum ($\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2$) dan ammonium hidroksida untuk mendapatkan alumunium hidroksida. Pembuatan alumina dilakukan dengan metode prekursor polimer. Pada penelitian ini, alumina yang dikarakterisasi dengan TEM merupakan fase alumina $\gamma \rightarrow \alpha$ yang dibagi menjadi tiga tahapan fase. Berdasarkan analisis TEM, fase pertama adalah γ -alumina yang memiliki struktur kubik dengan ukuran partikelnya $\sim 10 \text{ nm}$ sedangkan fase kedua $\gamma + \alpha$ -alumina dimana fase α -alumina memiliki struktur korondum, ukuran partikel rata-ratanya $\sim 55 \text{ nm}$ dan fase ketiga saat alumina telah berubah fase menjadi α -alumina seluruhnya sehingga ukuran partikelnya dibawah $\sim 100 \text{ nm}$.

Mahmoudi, *et.al* (2012) menentukan ukuran partikel alumina dari bahan baku alumunium klorida dengan menggunakan metode sol-gel. Alumina yang dihasilkan

selanjutnya dikalsinasi pada suhu 400°C selama 1 jam lalu dikarakterisasi dengan TEM. Partikel alumina yang dihasilkan berbentuk bangunan balok dengan ukuran partikel antara 20 hingga 40 nm. Hasil penelitian di atas menunjukkan bahwa bentuk geometri dan ukuran partikel alumina dipengaruhi oleh bahan baku, metode, dan suhu kalsinasi.

Salah satu pemanfaatan alumina yang banyak dilaporkan dalam literatur adalah sebagai bahan baku pembuatan zeolit sintetik. Sebagai contoh, Kamarudin, *et.al* (2004) membuat zeolit sintetik menggunakan bahan baku silika sekam padi dengan metode hidrotermal. Dalam penelitian tersebut, silika dari sekam padi diperoleh dengan cara pembakaran pada suhu 450, 600, dan 800 °C. Silika ini kemudian dicampur dengan Na₂O, Al₂O₃, dan H₂O untuk mendapatkan zeolit dengan komposisi 6,8 Na₂O:12SiO₂:Al₂O₃:240 H₂O.

Dalam penelitian lain (Htun, *et.al* 2012) dilaporkan pembuatan zeolit (NaX, faujasite) dari silika dan alumina murni. Pada penelitian tersebut, serbuk silika dilarutkan dalam air dan natrium hidroksida. Alumina trihidroksida (65% Al₂O₃) juga dilarutkan dalam air dan natrium hidroksida. Kedua larutan ini yang kemudian diperlukan dalam proses sintesis zeolit. Proses penuaan larutan silika dan alumina dilakukan dengan menggunakan *electric stirrer* pada 250 rpm. Komposisi larutan hidrogel adalah 4.2Na₂O: Al₂O₃: 3SiO₂: 180H₂O dengan rentang pH 13-14. Hasil dari proses hidrogel dimasukkan dalam wadah polietilen dan dikristalisasi secara hidrotermal pada suhu 100°C.

KESIMPULAN

Hasil penelitian menunjukkan bahwa metode elektrokimia dapat digunakan untuk menghasilkan alumina langsung dari logam aluminium. Alumina yang diperoleh belum berukuran nano, sehingga masih diperlukan

penelitian lanjut untuk menentukan variabel elektrokimia yang paling tepat untuk menghasilkan nanoalumina.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Kepala Laboratorium Kimia Fisik Jurusan Kimia FMIPA UNILA untuk fasilitas laboratorium.

DAFTAR PUSTAKA

- Cava, S., Tebcherani, S.M., Souza, I.A., Pianaro, S.A., Paskocimas, C.A., Longo, E., Varela, J.A. (2007). Structural characterization of phase transition of Al₂O₃ nanopowders obtained by polymeric precursor method. *Materials Chemistry and Physics* 103 p. 394–399.
- Davis, K. (2010). Material Review: Alumina (Al₂O₃). *School of Doctoral Studies (European Union) Journal*.
- Dong, Ying. (2014). Fundamental Theory of Transmission Electronic Microscopy. <http://www.nanoscience.gatech.edu/zlwang/research/tem.html>. Diakses pada tanggal 7 Februari 2014 pukul 10.19 WIB.
- Fujiwara, S., Tamura, Y., Maki, H., Azuma, N., Takeuchi, Y. (2007). Development of New High-Purity Alumina. *R&D Report, Sumitomo Kagaku, Vol. I*.
- Htun, M.M.H., Htay, M.M., Lwin, M.Z. (2012). Preparation of Zeolite (NaX, Faujasite) from Pure Silica and Alumina Sources. *International Conference of Chemical Processes and Environment Issues (ICCEEI'2012)*. Hal 15-16.

- Kamarudin, K.S.R, Wah, L.M, Yuan, C.Y, Hamdan H, Mat H. (2004). Rice Husk Based Zeolite As Methane Adsorbent. *Universiti Teknologi Petronas: Paper*.
- Kim, Y., Kim, C., Kim, P., Yi, J. (2005). Effect of Preparation Conditions on the Phase Transformation of Mesoporous Alumina. *Journal of Non-Crystalline Solids* 351 p. 550-556.
- Leveuvre, S., Fedorova, E., Gomonova, O., Tao, J. (2010). Microwave Sintering of Micro- and Nano-Sized Alumina Powder. *Advances in Modeling of Microwave Sintering 12th Seminar Computer Modeling in Microwave Engineering & Applications, Grenoble, France*.
- Mahmoudi, M.R., Kazemaini, M., Rashidi, A. M., Zarkesh, J., Khorasheh, F. (2012). Comparison of Regular Gamma and Nano-Structured Alumina Utilized in the Fischer Tropsch catalyst from Porasimetric Point of View. *Proceedings of the 4th International Conference on Nanostructures (ICNS4)*.
- Rogojan, R., Andronescu, E., Ghitulica, C., Vasile, B.S. (2011). Synthesis and Characterization of Alumina Nano-Powder Obtained By Sol-Gel Method. *U.P.B. Scientific Bulletin, Series B, Vol. 73*.
- Wicakso, D.R. (2011). Sintesis Biodiesel dari Crude Palm Oil dengan Katalis Alumina Hasil Recovery Limbah Padat Lumpur PDAM Intan Banjar. *INFO TEKNIK. Vol. 12 No 1*.
- XU, Y.M., HE, D.M., SHI, J.W., GUAN, J., ZHANG, Q.M. (2012). Preparation of Alumina From Retorting Residue of Oil Shale. *Oil shale Vol. 29 No. 1 p. 36-50*.

