

SINTESIS DAN KARAKTERISASI GAMMA ALUMINA (γ -Al₂O₃) DARI KAOLIN ASAL TATAKAN, KALIMANTAN SELATAN BERDASARKAN VARIASI TEMPERATUR KALSINASI

Utami Irawati*, Sunardi, Suraida

Program Studi S-1 Kimia FMIPA Universitas Lambung Mangkurat

Jl. A. Yani Km. 36 Banjarbaru Kalimantan Selatan

*e-mail : utami_irawati@yahoo.co.uk

ABSTRAK

Sintesis dan karakterisasi gamma alumina (γ -Al₂O₃) dari kaolin asal Tatakan, Kalimantan Selatan berdasarkan variasi temperatur kalsinasi telah dilakukan. Gamma alumina (γ -Al₂O₃) diperoleh dengan metode sol-gel. *Polyethylene glycol* 6000 digunakan sebagai *template* pembentuk pori, presipitasi dilakukan dengan penambahan NH₄OH 2,6 M hingga pH larutan 8-9 untuk memperoleh Al(OH)₃. Kalsinasi dilakukan pada temperatur 500, 600, 700 dan 800 °C. Gamma alumina (γ -Al₂O₃) hasil kalsinasi kemudian di analisis menggunakan *Fourier Transform Infrared* (FTIR) dan *X-Ray Diffraction* (XRD). Hasil analisis karakterisasi FTIR menunjukkan pada masing-masing variasi temperatur terbentuknya kerangka gamma alumina (γ -Al₂O₃) dan hasil XRD menunjukkan fasa alumina yang terbentuk adalah gamma alumina (γ -Al₂O₃). Struktur terbaik dari gamma alumina (γ -Al₂O₃) berdasarkan kekristalannya yaitu pada temperatur kalsinasi 700 °C dengan nilai $2\theta = 46,06; 60,07$ dan $66,93$.

Kata kunci : kaolin, gamma alumina, kalsinasi.

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION GAMMA ALUMINA (γ -Al₂O₃) FROM KAOLIN OF TATAKAN, SOUTH KALIMANTAN BASED ON TEMPERATURE VARIATION OF CALCINATION

ABSTRACT

Synthesis and characterization gamma alumina (γ -Al₂O₃) from kaolin of Tatakan, South Kalimantan with variation on their calcination temperature has been done. In this research, gamma alumina (γ -Al₂O₃) was made by sol-gel method. Polyethylene glycol was utilized as a template of forming pore, precipitation was done by addition of 2.6 M NH₄OH until pH 8-9 to obtain Al(OH)₃. Calcination was carried out at various temperature, i.e. 500, 600, 700 and 800°C. Gamma alumina (γ -Al₂O₃) obtained from the calcination process was then analyzed using FTIR (Fourier Transform Infrared) Spectroscopy and XRD (X-Ray Diffraction) method. The FTIR result showed that at each variation of temperature, the structural backbone of gamma alumina (γ -Al₂O₃) has already started to form, which is in line with the result of XRD analysis that indicated that the alumina phase being formed was gamma alumina (γ -Al₂O₃). The best structure of gamma alumina (γ -Al₂O₃) based on its crystallinity was obtained at the calcination temperature 700 °C, where its values of 2θ were $46,06; 60,07$ dan $66,93$.

Keywords: kaolin, gamma alumina, calcination.

PENDAHULUAN

Alumina (Al_2O_3) terdapat sebagai alumina hidrat dan alumina anhidrat. Alumina anhidrat, Al_2O_3 , terdapat dalam bentuk alumina stabil berupa α -alumina dan alumina metastabil yaitu, gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$), delta alumina ($\delta\text{-Al}_2\text{O}_3$), theta alumina ($\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$), kappa alumina ($\kappa\text{-Al}_2\text{O}_3$) dan chi alumina ($\chi\text{-Al}_2\text{O}_3$), sedangkan hidratnya berada dalam bentuk aluminium hidroksida seperti gibbsite, bayerit, boehmite dan diaspore. Aluminium hidroksida merupakan komponen utama di dalam bauksit, sehingga umumnya aluminium hidroksida dibuat dari bauksit, sedangkan alumina anhidrat dibuat dari dehidrasi aluminium hidroksida. Di alam alumina anhidrat juga terdapat sebagai mineral korundum (Ulyani, 2008; Utari, 1994).

Di antara alumina transisi, gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) merupakan suatu bahan yang penting digunakan dalam berbagai bidang, misalnya sebagai katalis katalisator substrat di dalam industri otomotif dan petroleum, komposisi struktural untuk pesawat ruang angkasa dan pakaian pelindung dari gesekan dan panas atau abrasi dan thermal (Paglia, *et al.*, 2004; Wang *et al.*, 2009). Gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) dalam ukuran nano (1-100 nm) merupakan terobosan baru untuk memperoleh material dengan sifat yang berbeda dengan material dalam fase *bulk* terutama dari segi peningkatan kekuatan mekanik dan termal serta luas permukaan yang sangat besar. Sintesis nano $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ dapat dilakukan dengan beberapa metode, misalnya proses sol-gel, hidrotermal dan pengontrolan presipitasi dari larutan garam alumina, alkoksida, dan serbuk metal (Liu *et al.*, 2008; Parida *et al.*, 2009).

Sintesis gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) dengan metode hidrotermal dan pengontrolan presipitasi dari larutan garam alumina ini memerlukan biaya yang mahal terutama untuk aluminium

alkoksida atau garam sebagai sumber dasar Al dan persiapan prosedur yang kompleks dan parameter pengoperasian yang tidak fleksibel mengarah kepada biaya yang lebih tinggi (Wang *et al.*, 2009). Di antara banyaknya metode-metode sintesis, metode sol-gel merupakan metode yang paling baik dan menjanjikan karena menghasilkan partikel-partikel padat dengan kemurnian yang tinggi dan luas permukaan yang besar. Selain itu, keuntungan metode sol-gel adalah memiliki stabilitas termal yang baik, stabilitas mekanik yang tinggi, daya tahan pelarut yang baik, modifikasi permukaan dapat dilakukan dengan berbagai kemungkinan (Parida *et al.*, 2009).

Salah satu potensi alam yang dapat dipertimbangkan sebagai bahan dasar pembuat alumina adalah kaolin. Kaolin merupakan sumber daya alam yang keberadaannya di Kalimantan Selatan cukup besar seperti di Kabupaten Hulu Sungai Utara, Tapin, Banjar dan Kotabaru. Sampai saat ini, kaolin merupakan sumber daya alam yang belum dimanfaatkan dengan baik dan daya jualnya juga sangat rendah. Pada penelitian ini digunakan kaolin asal Tatakan, Kalimantan Selatan, dimana kaolin asal Tatakan ini memiliki kandungan Al_2O_3 25,39%, SiO_2 61,05%, MgO 0,091%, Fe_2O_3 0,885% dan TiO_2 1,03% (Khairunnisa, 2011).

Kaolin terdapat dalam bentuk endapan sedimen memiliki kualitas tinggi dengan karakteristik, warna putih, abu-abu, lunak, dan tidak plastis serta kandungan aluminanya yang cukup tinggi. Dengan demikian kaolin dapat digunakan sebagai solusi dalam pencarian bahan baru berbasis bahan alam sebagai sumber sintesis alumina. Kaolin terdiri dari mineral silika tetrahedral berlapis dan lapisan oktahedral alumina yang terhubung melalui atom oksigen. Mineral kaolin mengandung alumina (Al_2O_3) dengan kisaran berat 20-60%. Sehingga,

sangat cocok untuk produksi alumina karena memiliki kelimpahan yang besar dalam kaolin (Hosseini *et al.*, 2011).

Dalam proses pembentukan alumina dari kaolin, temperatur kalsinasi merupakan faktor penting. Kalsinasi menyebabkan terjadinya dekomposisi termal, transisi fasa atau penghilangan zat-zat volatil. Menurut Gates (1992) untuk α - Al_2O_3 menunjukkan fasa stabil pada temperatur di atas 1000 °C, sedangkan fasa metastabilnya berupa gamma alumina (γ - Al_2O_3), delta alumina (δ - Al_2O_3), theta alumina (θ - Al_2O_3), kappa alumina (κ - Al_2O_3) dan chi alumina (χ - Al_2O_3), muncul temperatur di bawah 1000 °C. Gamma alumina (γ - Al_2O_3) terbentuk melalui pemanasan $\text{Al}(\text{OH})_3$ pada suhu 500-800 °C.

Berdasarkan uraian di atas, dapat disimpulkan bahwa nilai guna kaolin akan jauh bertambah jika kaolin tersebut disintesis menjadi gamma alumina. Selanjutnya, untuk meningkatkan nilai ekonomis dari gamma alumina tersebut ehingga dapat diproduksi dalam skala komersial, perlu dilakukan kajian terhadap metode yang akan memberikan hasil optimum dengan proses yang tidak memerlukan biaya yang tinggi. Dalam penelitian ini, dilakukan studi terhadap temperature kalsinasi yang memberikan hasil optimum dalam sintesis gamma alumina dari kaolin.

METODE PENELITIAN

Preparasi Kaolin

Sampel padatan kaolin dari daerah Tatakan, Kalimantan Selatan dikeringkan dalam oven selama 24 jam pada temperatur 80 °C. Kaolin kering dihaluskan menggunakan penggerus porselin dan diayak hingga lolos saringan 170 mesh. Sebanyak 100 gram kaolin alam lolos ayakan 170 mesh dimasukkan ke dalam 1000 mL akuades sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 3 sampai 4 jam.

Sejumlah larutan 30% H_2O_2 dimasukkan sedikit demi sedikit ke dalam campuran untuk menghilangkan zat-zat organik yang ditandai dengan tidak adanya lagi gelembung udara yang terbentuk. Campuran diaduk selama semalam dan kemudian didiamkan sehingga kaolin mengendap lalu bagian atas didekantir. Pada endapan ditambahkan kembali akuades dan diaduk kembali selama 1 jam, didiamkan kembali dan kemudian didekantir. Perlakuan di atas diulang sebanyak 3 kali untuk menghilangkan sisa H_2O_2 . Kaolin hasil preparasi kemudian dikeringkan kembali pada temperatur 100 °C selama semalam. Kaolin hasil purifikasi selanjutnya dianalisis menggunakan FTIR dan XRD untuk mengetahui karakteristiknya (Sunardi *et al.*, 2009).

Metakaolinisasi

Dekomposisi kaolin dilakukan dengan proses kalsinasi pada temperatur 800 °C selama 3 jam untuk mengubah kaolin menjadi fasa amorf metakaolin melalui proses dehidroksilasi. Pada perlakuan ini kaolin dikonversi menjadi metakaolin dengan memutus ikatan pada ruang antar lapis silika alumina dan melepaskan molekul H_2O . Metakaolin yang diperoleh selanjutnya dianalisis menggunakan FTIR dan XRD untuk mengetahui karakteristiknya.

Aktivasi Asam

Proses aktivasi asam dilakukan untuk melarutkan komponen alumina pada metakaolin sehingga diperoleh larutan alumina. Proses ini menggunakan metode refluks dengan HCl 6 M pada temperatur 90°C selama 24 jam (rasio perbandingan metakaolin: HCl yaitu 1 g : 10 mL) (Cristobal *et al.*, 2009).

Sintesis Alumina

Sintesis alumina dilakukan setelah melalui proses *leaching*. Filtrat yang

diperoleh dari hasil *leaching* kemudian disintesis menjadi aluminium hidroksida dengan penambahan polietilen glikol (PEG, massa molar 6000). Setelah itu dilakukan presipitasi aluminium hidroksida dari filtratnya dengan cara diaduk menggunakan stirrer selama 24 jam dan ditambahkan NH_4OH 2,6 M sampai pH stabil sekitar 7,5-8,0. Setelah itu padatan diperoleh dicuci dengan akuades dan dikeringkan pada temperatur 60 °C. Kemudian dilakukan kalsinasi pada temperatur 500, 600, 700 dan 800 selama 3 jam untuk memperoleh alumina (Al_2O_3). Karakterisasi alumina (Al_2O_3) yang diperoleh dianalisis dengan menggunakan FTIR dan XRD.

Karakterisasi Difraksi Sinar-X

Pengukuran difraksi sinar-X (XRD) menggunakan difraktometer sinar-X Shimadzu XRD-6000 yang memiliki sumber sinar-X λ Cu $K\alpha = 1,54 \text{ \AA}$, dioperasikan pada 40 kV dengan slit divergensi dan pantulan 10. Sampel padatan diletakkan pada holder terbuat dari gelas. Pengambilan data pada daerah 2θ dari 50 hingga 600 dengan laju 50/menit.

Fourier Transform Infra Red (FTIR)

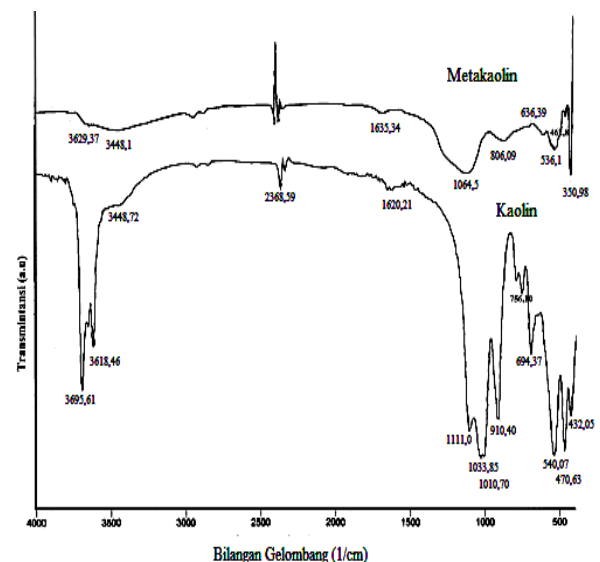
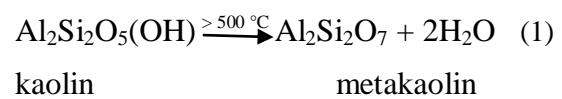
Untuk keperluan analisis FTIR dilakukan pencampuran sekitar 2 mg sampel dengan 200 mg KBr dan kemudian dihomogenkan lalu dibuat pellet tipis dengan cara ditekan menggunakan *vibrating mill* dengan tekanan 8-9 ton. Pengukuran dilakukan pada bilangan gelombang 400 hingga 4000 cm^{-1} menggunakan spektrofotometer inframerah.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Proses Kaolin menjadi Metakaolin

Proses sintesis alumina diawali dengan pembentukan metakaolin yaitu

melalui proses metakaolinisasi dengan cara merubah struktur berlapis dari kaolin alam Tatakan hingga menjadi amorf. Metakaolin yang diperoleh dari proses metakaolinisasi ini dengan cara mengkalsinasikan kaolin pada temperatur 800 °C selama 3 jam. Menurut Rocha dan Klinowski (1990), kondisi terbaik untuk memperoleh metakaolin adalah pada kisaran temperatur 600-800 °C, yang diikuti hilangnya struktur air. Persamaan reaksi (1) menunjukkan reaksi yang terjadi pada proses metakaolinisasi sebagai berikut :



Gambar 2. Spektra inframerah sampel kaolin asal Tatakan dan metakaolin

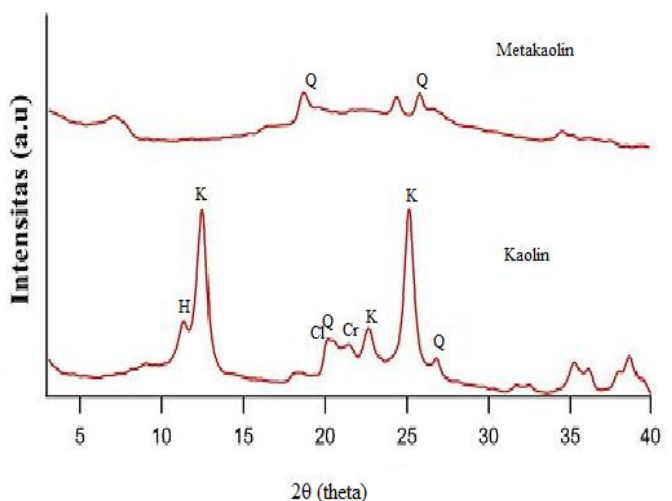
Sampel metakaolin dianalisis menggunakan metode spektroskopi FTIR (*Fourier Transform Infrared*) untuk memberikan informasi tentang gugus fungsional yang terdapat pada sampel berdasarkan jenis vibrasi gugus fungsional selain itu juga dapat menunjukkan keberadaan mineral lain serta adanya mineral-mineral pengotor yang terdapat pada sampel. Jenis-jenis vibrasi yang khas secara kualitatif akan

menunjukkan gugus fungsional yang khas pada kaolin dan metakaolin. Spektra FTIR metakaolin ditunjukkan pada Gambar 2.

Kedua spektra inframerah pada Gambar 2 yang diperoleh menunjukkan perbedaan ketajaman puncak serapan yang terjadi antara kaolin alam dan metakaolin. Terlihat sangat jelas puncak-puncak serapan yang dimiliki oleh kaolin hilang pada spektra metakaolin. Hal ini disebabkan oleh hilangnya beberapa gugus -OH pada akibat dehidroksilasi yang terjadi selama metakaolinisasi. Daerah $3448,1\text{ cm}^{-1}$ yang dimiliki metakaolin, menunjukkan serapan karakteristik vibrasi ulur dari -OH dan puncak serapan pada daerah $1635,34\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi tekuk -OH . Sedangkan serapan pada daerah $3629,37\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi ulur -OH yang terikat pada atom Al oktahedral yang terdapat pada permukaan silikat atau pada antar lapis silikat. Pita serapan pada daerah antara $1250\text{-}950\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan serapan vibrasi rentangan asimetris eksternal (T-O-T) dan internal (O-T-O) (Sunardi *et al.*, 2009) yaitu pada daerah $1064,51\text{ cm}^{-1}$. Sedikit pergeseran spektra terjadi pada serapan pada bilangan gelombang sekitar 900 cm^{-1} yang merupakan vibrasi tekuk Al-OH (Sunardi *et al.*, 2009) yaitu terjadi pergeseran ke arah bilangan gelombang $806,09\text{ cm}^{-1}$ dari sebelumnya $910,40\text{ cm}^{-1}$. Daerah serapan $636,39\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi cincin ganda dan pada daerah $536,11\text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi $\text{Si-O-Al}^{\text{VI}}$. Daerah $500\text{-}420\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi tekuk Al-O (Sunardi *et al.*, 2009) yaitu daerah $462,8\text{ cm}^{-1}$. Puncak serapan tajam yang menunjukkan serapan karakteristik vibrasi pori terbuka terdapat pada daerah $420\text{-}300\text{ cm}^{-1}$ (Sunardi *et al.*, 2009) yaitu $350,95\text{ cm}^{-1}$.

Identifikasi komponen penyusun sampel dilakukan dengan membandingkan antara posisi puncak

intensitas difraksi (2θ) pada difraktogram sinar-X sampel dan posisi puncak intensitas difraksi (2θ) yang terdapat pada yaitu *Joint Committee for Powder Diffraction Standards* (JCPDS) standar difraksi sinar-X untuk hampir semua jenis material. Pada Gambar 12 menunjukkan difraksi sinar-X dari kaolin dan metakaolin dimana, harga posisi puncak intensitas difraksi dari kaolin alam Tatakan yaitu sekitar $2\theta (^{\circ}) = 6,28^{\circ}; 12,14^{\circ}; 12,42^{\circ}; 12,45^{\circ}; 18,90^{\circ}; 20,00^{\circ}; 20,40^{\circ}; 20,88^{\circ}; 22,12^{\circ}; 24,88^{\circ}; 25,00^{\circ}$ dan $26,66^{\circ}$. Harga $2\theta (^{\circ})$ dan bidang kisi kristal untuk mineral kaolinit adalah $12,42^{\circ}; 20,40^{\circ}; 24,88^{\circ}$. Untuk mineral klorit adalah $6,28^{\circ}; 12,45^{\circ}; 18,90^{\circ}; 25,00^{\circ}$. Untuk mineral kuarsa adalah $20,88^{\circ}; 26,66^{\circ}$; untuk kristobalit adalah $22,12^{\circ}$ (Amman, 2003) dan untuk haloisit adalah $12,14^{\circ}; 20,00^{\circ}$ (Tan, 1998).



Gambar 3. Difraktogram sinar-X sampel kaolin alam Tatakan dan metakaolin (K= Kaolinit, Q = Kuarsa, Cr = Kristobalit, H = Haloisit, Cl = Klorit)

Difraktogram sinar-X pada Gambar 3 menunjukkan perbedaan yang terjadi antara puncak-puncak kaolin alam Tatakan dan metakaolin yaitu dengan

hilangnya puncak-puncak pada difraktogram kaolin alam. Hilangnya puncak-puncak haloisit, kaolin, klorit dan kristobalit disebabkan proses metakaolinisasi sehingga struktur kristalnya berubah menjadi amorf. Pada difraktogram metakaolin masih terdapat puncak kuarsa yaitu pada $2\theta = 20,88^\circ$ dan $26,66^\circ$. Struktur kristal dari kuarsa tidak dapat rusak pada pemanasan temperatur 800 °C dikarenakan kuarsa cukup stabil pada kondisi tersebut. Bai (2010) menyatakan bahwa struktur kristal kuarsa dapat rusak apabila dikalsinasi dengan temperatur di atas 1000 °C. Sedangkan pada temperatur di atas 1000 °C akan terbentuk *mullite*.

Dari hasil analisis data FTIR dan XRD yang diperoleh dapat disimpulkan bahwa terjadi perubahan komposisi unsur penyusun struktur dan perubahan gugus fungsional dari kaolin alam dan metakaolin. Komposisi unsur penyusun kaolin alam yang semula terdiri dari haloisit, kaolin, klorit dan kristobalit hilang disebabkan oleh proses metakaolinisasi yang menyebabkan struktur kristalnya amorf. Puncak-puncak tersebut tidak terlihat pada difraktogram metakaolin.

Pengaruh Temperatur Kalsinasi terhadap Struktur Gamma Alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$)

Proses aktivasi asam dilakukan pada metakaolin yang akan melarutkan lembar oktahedral sehingga menghasilkan padatan yang memiliki luas permukaan yang lebih tinggi, memiliki sifat adsorpsi dan sebagai katalis yang lebih baik dibanding lempung alam, tergantung pada material awal dan kondisi pada saat perlakuan (Belver *et al.*, 2002). Aktivasi asam pada metakaolin ini menggunakan HCl 6 M pada suhu 90 °C selama 24 jam, dimana menurut Belver *et al.* (2002) aktivasi asam dengan HCl 6 M pada suhu 90 °C selama 24 jam mampu meningkat-

kan kadar Al yang terkandung dalam filtrat. Peningkatan jumlah Al dalam filtrat ini karena adanya dealuminasi. Proses dealuminasi akibat perlakuan asam dapat memutuskan ikatan Al-O yang lemah. Ikatan Al-O yang cenderung merupakan ikatan ionik akan lebih mudah diputus oleh perlakuan asam. Ikatan pada Si-O yang cenderung kovalen lebih kuat sehingga tidak mudah putus akibat aktivasi asam (Marques *et al.*, 2005).

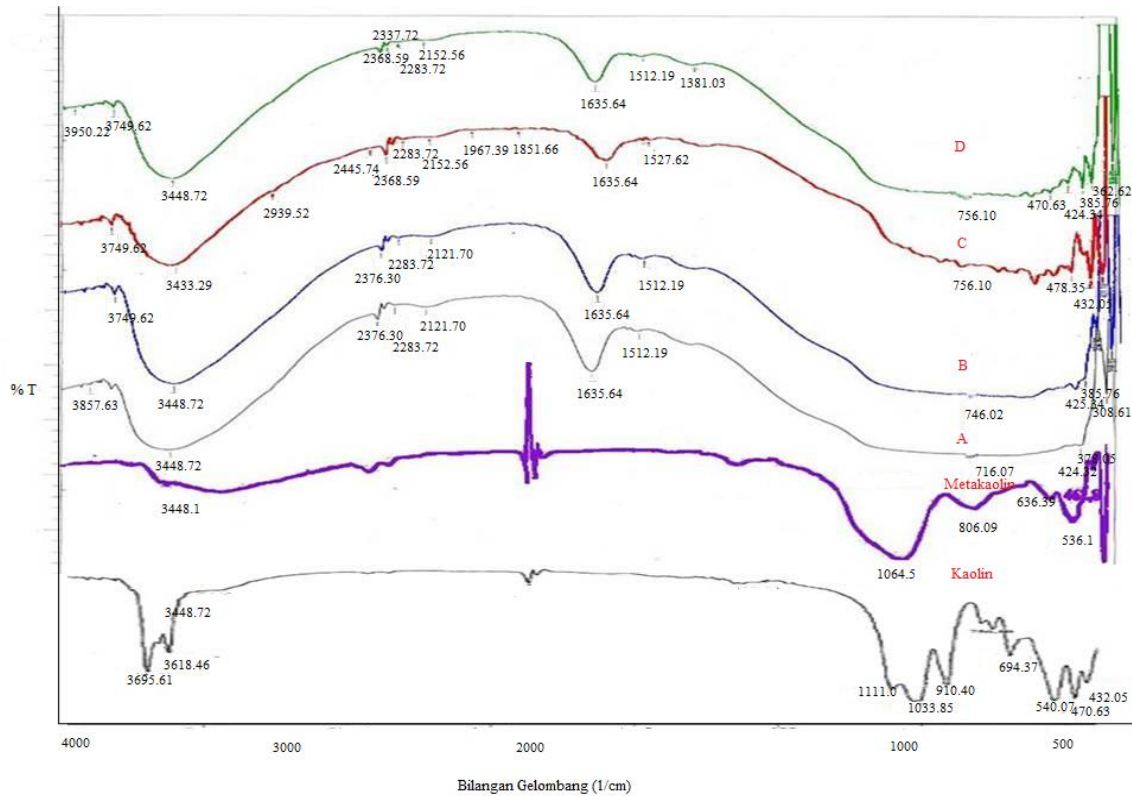
Polietilen Glikol (PEG) yang digunakan memiliki berat molekul 6000 gram/mol, berat molekul ini digunakan karena semakin besar BM Polietilen Glikol (PEG) maka derajat polimerisasi semakin besar, dimana derajat polimerisasi menyatakan banyaknya rantai yang terkandung dalam Polietilen Glikol (PEG). Sehingga Polietilen Glikol (PEG) 6000 mempunyai rantai lebih panjang dibanding BM 1000. Panjangnya rantai ini menyebabkan semakin banyaknya partikel Al_2O_3 terjebak dalam rantai Polietilen Glikol (PEG) sehingga pertumbuhan kristal terhalang untuk membesar dan ukuran kristal semakin kecil, dapat digunakan untuk membuat ukuran partikel mesopori.

Temperatur kalsinasi merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi dan pengarahan bentuk fasa dari alumina. Kalsinasi merupakan penanganan lanjut terhadap suhu setelah proses pengeringan. Besarnya temperatur pada saat proses kalsinasi sangat mempengaruhi jenis produk alumina yang dihasilkan. Dalam penelitian ini temperatur kalsinasi pada alumina divariasikan pada temperatur 500, 600, 700 dan 800 °C. Adamson (2010) menyampaikan beberapa fenomena yang terjadi pada waktu proses kalsinasi, antara lain penghilangan air terikat (secara kimia) molekul air, CO_2 dan molekul-molekul volatil lainnya; perubahan distribusi ukuran pori; timbulnya fasa atau situs aktif;

pengkondisian permukaan katalis dan stabilitas sifat-sifat mekanik.

Data spektroskopi FTIR dari variasi temperatur kalsinasi memberikan informasi mengenai jenis vibrasi gugus

fungsional yang terdapat pada sampel. Jenis-jenis vibrasi yang khas secara kualitatif akan menunjukkan struktur alumina yang terbentuk. Spektra FTIR dari alumina ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Spektra Inframerah sampel gamma alumina dengan variasi temperatur kalsinasi (kaolin, metakaolin, A=500°C, B=600°C, C=700°C dan D=800°C)

Tabel 1. Puncak serapan FTIR gamma alumina

Daerah (cm ⁻¹)	meta-kaolin	A	B	C	D	Keterangan
4000-1250	3629,37	3857,63	3749,62	3749,62	3749,62	Vibrasi ulur –OH ⁺ (Al---O-H inter oktahedral)
	3448,72	3448,1	3448,72	3448,72	3448,72	Vibrasi ulur –OH ^{**}
	1635,64	1635,34	1635,34	1635,34	1635,64	Vibrasi tekuk –OH ^{**}
850-650	806,09	716,07	746,02	756,10	756,08	Vibrasi ulur Al-O
500-420	462,8	424,32	425,34	432,05	424,34	Vibrasi tekuk Al-O
				478,35	470,63	
420-300	350,98	308,61	316,33	401,19	308,61	Vibrasi pori terbuka
		378,05	354,90		362,62	
			385,76		385,76	

* = Ekosse (2005)

** = Nayak & Singh (2007)

Daerah antara 4000-1250 cm^{-1} menunjukkan adanya serapan vibrasi gugus -OH. Pada kristal alumina gugus ini dapat berasal dari hidrat (Hamdan, 1992). Vibrasi ulur OH⁻ (Al---O-H inter oktahedral) (Ekosse, 2005). Pada metakaolin daerah 3629,37 cm^{-1} dan sampel A, B, C dan D pada daerah 3857,63 cm^{-1} merupakan daerah serapan -OH yang terikat pada atom Al oktahedral pada permukaan alumina atau pada antar lapis alumina yang dimiliki oleh metakaolin dan keempat sampel lainnya. Pada sampel A, B, C dan D pita serapan lebih tajam dibanding metakaolin, menyatakan bahwa jumlah -OH yang diserap lebih tinggi. Hal ini disebabkan adanya perubahan struktur dari oktahedral menjadi tetrahedral karena proses sintesis dan kalsinasi pada metakaolin.

Pita serapan pada bilangan gelombang 3700-3400 cm^{-1} berhubungan dengan gugus hidroksil (-OH) dari molekul H₂O yang merupakan vibrasi ulur gugus -OH. Pada hasil sintesis yang kemudian dikalsinasi serapan ini muncul pada bilangan gelombang sekitar 3448,72 cm^{-1} pada metakaolin, sampel A, B, C dan D, namun pada keempat sampel hasil sintesis dan kalsinasi sangat lebar dibanding pada metakaolin, hal ini karena kemampuan -OH untuk membentuk ikatan hidrogen dengan gugus-gugus -OH lainnya. Pita serapan baru muncul pada 1635,34 cm^{-1} hingga 1635,64 cm^{-1} yang merupakan vibrasi tekuk -OH dari molekul H₂O (Nayak & Singh, 2007). Pita serapan ini muncul karena terjadi penyerapan air dari udara yang disebabkan oleh sifat alumina yang cukup higroskopis.

Serapan pada daerah bilangan gelombang 850-650 cm^{-1} merupakan serapan vibrasi ulur Al-O dengan vibrasi rentangan simetris, vibrasi rentang simetris dapat dibedakan menjadi 2 daerah yaitu 720-650 cm^{-1} yang merupakan vibrasi internal (Sunardi *et*

al., 2009) dan 850-720 cm^{-1} yang merupakan vibrasi eksternal (Hamdan, 1992). Pada metakaolin terdapat daerah serapan vibrasi rentangan simetris yaitu pada daerah 806,09 cm^{-1} , sedangkan sampel A, B, C dan D memiliki vibrasi eksternal pada daerah 756,07 cm^{-1} , 756,09 cm^{-1} , 756,10 cm^{-1} dan 756,08 cm^{-1} . Menurut Renuka *et al* (2012) serapan yang terlihat pada daerah 1000 cm^{-1} hingga 435 cm^{-1} menyatakan adanya bentuk gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) salah satunya adalah 758 cm^{-1} yang menandakan adanya ikatan vibrasi dari Al-O.

Pita serapan pada daerah 500-420 cm^{-1} berhubungan dengan vibrasi tekuk Al-O sedangkan pita serapan 420-300 cm^{-1} berhubungan dengan adanya pori terbuka pada kristal (Sunardi *et al.*, 2009). Vibrasi tekuk Al-O terdapat pada metakaolin di daerah 462,8 cm^{-1} , sedangkan pada sampel A dan B terdapat dan muncul pada daerah 424,32 cm^{-1} , 425,34 cm^{-1} , sedangkan sampel C pada daerah 432,05 cm^{-1} dan 478,35 cm^{-1} dan terlihat juga pada sampel D di daerah 424,34 cm^{-1} dan 470,63 cm^{-1} . Puncak serapan pada sampel C untuk vibrasi tekuk Al-O lebih tajam dibanding sampel D, dan pada sampel D juga mengalami penurunan nilai serapan. Adanya vibrasi tekuk Al-O dan vibrasi ulur Al-O pada daerah tersebut menyatakan adanya kerangka alumina (Renuka *et al.*, 2012) dimana pada keempat sampel tersebut semakin jelas ketajaman vibrasi ulur Al-O yaitu pada sampel C, adanya vibrasi ulur Al-O hal ini menunjukkan terbentuknya kerangka alumina pada setiap sampel.

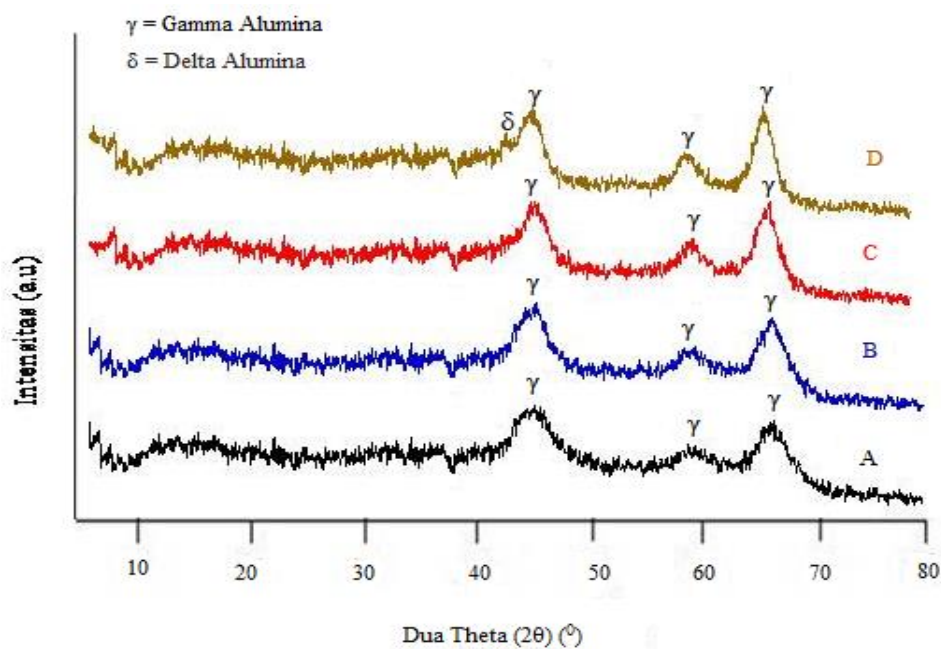
Adanya pori terbuka terdapat pada metakaolin di daerah 350,98 cm^{-1} Sedangkan pada sampel A vibrasi pori terbuka terdapat di daerah 308,61 cm^{-1} dan 378,05 cm^{-1} , sampel B di daerah 316,33 cm^{-1} , 354,90 cm^{-1} dan 385,76, sampel C terdapat di daerah 401,19 cm^{-1} dan sampel D di daerah 308,61 cm^{-1} ,

362,62 cm^{-1} dan 385,76 cm^{-1} . Diantara keempat sampel, sampel C memiliki nilai serapan vibrasi pori terbuka paling tajam puncaknya dan nilai serapan paling tinggi. Ini menunjukkan bahwa sampel C memiliki kereaktifan tertinggi sedangkan sampel D memiliki kereaktifan yang menurun pada kalsinasi temperatur 800 °C.

Metode *X-Ray Diffraction* (XRD) merupakan suatu metode analisis kualitatif yang memberikan informasi mengenai kekristalan suatu mineral tertentu. Hal ini dikarenakan setiap mineral mempunyai pola difraktogram yang karakteristik yang khas. Kristalinitas sampel dilihat dari tampilan pola difraktogramnya. Difraktogram yang memiliki pola pemisahan puncak-puncak yang jelas dan intensitas ketajaman puncaknya tinggi memiliki kristalinitas yang baik. Pada penelitian ini, semua produk alumina yang dihasilkan dikarakterisasi dengan metode *X-Ray Diffraction* (XRD). Pola

difraktogram pada sampel A, B, C, dan D ditunjukkan pada Gambar 5.

Berdasarkan Gambar 5 terlihat bahwa perbedaan signifikan dapat dilihat dari ketajaman puncak dari sampel A, B, C, dan D. Adanya puncak-puncak muncul di tempat yang hampir sama menandakan bahwa kristalinitas hasil sintesis gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) mirip satu dengan yang lainnya. Penyidikan terhadap fasa alumina (Al_2O_3) yang terbentuk dari hasil sintesis dapat dilakukan melalui perbandingan nilai 2θ hasil sintesis dengan nilai 2θ dari gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) standar. Perbandingan dilakukan dengan data gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) standar yang ada dalam *Joint Committee on Power Diffraction* (JCPDS) dari alumina. Bila puncak-puncak difraktogram atau nilai 2θ memiliki kemiripan dengan alumina (Al_2O_3) standar berarti produk yang dihasilkan memiliki fasa yang sama dengan hasil dari standar.



Gambar 5. Difraktogram sinar-X sampel gamma alumina dengan variasi temperatur kalsinasi (A=500°C, B=600°C, C=700°C dan D=800°C)

Tabel 2. Perbandingan gamma alumina standar dengan gamma alumina hasil sintesis

Gamma Alumina								
(γ -Al ₂ O ₃) standar*	A (500 ⁰ C)		B (600 ⁰ C)		C (700 ⁰ C)		D (800 ⁰ C)	
2 θ	2 θ	I	2 θ	I	2 θ	I	2 θ	I
45,86	45,98	29	45,44	38	46,06	52	45,71	50
60,02	59,64	13	59,86	22	60,01	27	59,60	25
67,03	66,87	48	66,66	68	66,93	79	66,76	94

* = Le Coz *et al* (2000).

Pada Tabel 2 merupakan perbandingan nilai gamma alumina (γ -Al₂O₃) standar dengan gamma alumina (γ -Al₂O₃) hasil sintesis, dari tabel ini dapat diperoleh informasi bahwa nilai 2 θ dari keempat sampel menunjukkan struktur gamma alumina (γ -Al₂O₃) yang terbentuk pada rentang temperatur 500-800 °C. Gamma alumina (γ -Al₂O₃) terbentuk pada nilai 2 θ = 45, 60 dan 67 (Hosseini *et al.*, 2011). Dari tabel 4 juga terlihat intensitas yang terus meningkat dari sampel A (500 °C) hingga C (700 °C) dan menurun pada sampel D, ini menyatakan kekristalan terbaik dari gamma alumina berada pada sampel C yaitu temperatur kalsinasi 700 °C sedangkan sampel D pada temperatur 800 °C mulai terjadi perubahan fasa metastabil lainnya. Pada temperatur 800 °C mulai terbentuk struktur alumina metastabil berupa delta alumina (δ -Al₂O₃) (Le Coz *et al.*, 2010) yaitu 2 θ = 43,83.

Hasil pengamatan X-Ray Diffraction (XRD) menunjukkan intensitas paling tinggi untuk keempat sampel gamma alumina (γ -Al₂O₃) terdapat pada puncak 2 θ = 45,86; 60,02 dan 67,03 dimana dari A, B dan C terus mengalami peningkatan intensitas yang dimiliki gamma alumina (γ -Al₂O₃). Hal ini menunjukkan pada temperatur kalsinasi 500-700⁰C semakin besar temperatur kalsinasi yang diberikan maka semakin tinggi pula intensitas puncak yang dihasilkan oleh gamma alumina (γ -Al₂O₃). Hal ini selaras dengan hal yang

dikemukakan oleh Yang *et al.* (2010) yang menyatakan bahwa gamma alumina (γ -Al₂O₃) yang disintesis pada suhu 700 °C memiliki kristalinitas yang baik. Pada sampel D yaitu temperatur kalsinasi 800 °C terjadi penurunan intensitas, penurunan ini dikarenakan berkurangnya kristalinitas akibat temperatur kalsinasi 800 °C yang terlalu tinggi untuk struktur gamma alumina (γ -Al₂O₃).

Data dari karakterisasi FTIR dan XRD dengan membandingkan nilai intensitas, bilangan gelombang dan dua theta (2 θ) maka dapat memperkuat hipotesis bahwa variasi temperatur kalsinasi mempengaruhi karakteristik dari gamma alumina (γ -Al₂O₃) berupa pembentukan kristalinitas dari gamma alumina (γ -Al₂O₃), sehingga dapat disimpulkan bahwa gamma alumina (γ -Al₂O₃) yang terbentuk memiliki kristalinitas yang berbeda sesuai dengan temperatur kalsinasi yang diberikan. Temperatur kalsinasi atau perlakuan panas pada gamma alumina (γ -Al₂O₃) menyebabkan adanya perubahan fasa transisi dari alumina menjadi gamma alumina (γ -Al₂O₃), hal ini juga dinyatakan oleh Gates (1992) bahwa fasa gamma alumina (γ -Al₂O₃) terbentuk melalui pemanasan Al(OH)₃ pada temperatur kalsinasi 500-800 °C.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa variasi temperatur

kalsinasi pada 500-800 °C mempengaruhi struktur gamma alumina (γ -Al₂O₃) yang terbentuk, dari hasil variasi temperatur kalsinasi ini terbentuk gamma alumina (γ -Al₂O₃) dengan kondisi kekristalan terbaik pada temperatur kalsinasi 700⁰C dilihat dari karakterisasi *Fourier Transform Infrared* (FTIR) dan *X-Ray Diffraction* (XRD).

DAFTAR PUSTAKA

- Adamson, A.W., J. Willey, & S. Chichester 1990. *Physical Chemistry of Surface. California, Inc.* 110(4): 157.
- Amman, L. 2003. Cation Exchange and Adsorption on Clays and Clays Minerals. *Disertation*, Kiels University.
- Bai, J. 2010. Fabrication and Properties of Porous Mullite Ceramic from Calcines Carbonaceous Kaolin and α -Al₂O₃. *Ceramics International*. 36: 673-678.
- Belver, C., M. A. B. Muoz, & M. A. Vicente. 2002. Chemical Activation of a Kaolinite under Acid and Alkaline Conditions. *Journal Chemistry of Materials*. 14(5): 2033-2037.
- Cristobal, A.G.S., R. Mastello, M.A.Martin Luengo, & C. Vizcayno. 2009. Acid activation of mechanically and thermally modified kaolins. *Materials Research Bulletin* 44: 2103–2111.
- Ekosse, E. G. 2005. Fourier Transform Infrared Spectropdotometry and X-Ray Power Diffractomery as Complementary Techniques in Characterizing Clay Size Fraction of Kaolin. *J. Appl. Sci. Environ Mgt.* 9(2): 43-48.
- Gates, B.C.1992. *Catalytic Chemistry*, John Willey and Sons, New York.
- Hosseini, S. A., A. Niaei, & D. Salari. 2011. Production of Gamma Alumina from Kaolin. *Open Journal of Physical Chemistry*. 1: 23-27.
- Khairunnisa. 2011. Pembuatan dan Karakterisasi Membran Keramik Berpori Berbahan Baku Kaolin dengan Penambahan Corn Starch Sebagai Pore Forming Agent. *Skripsi*. Program Studi Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Lambung Mangkurat. Banjarbaru.
- Le Coz, F., L. Arurault, S. Fountorbes, V. Vilar, L. Datasa, & P. Winterton. 2010. Chemical composition and structural changes of porous templates obtained by anodizing aluminium in phosphoric acid electrolyte. *Open Archive Toulouse Archive Ouverte*. 42: 227-233.
- Liu, Y., Ma, D., Han, X., Bao, X., Frandsen, W., Wang, D., Su, D. 2008. Hydrithermal synthesis of microscale boehmite and gamma nanoleaves alumina. *Materials Letters*. 62: 1297 - 1301
- Marques, J.P., I. Gener, & P. Ayrault. 2005. Dealumination of HBEA zeolite by steaming and acid leaching:distribution of the various aluminic species and identificationof the hydroxyl groups. *Applied Clay Science* 49: 239–246
- Nayak, P. S & B.K Singh. 2007. Instrumental Characterization of Clay by XRF, XRD and FTIR. *Bulletin of Materials Science*. 30(3): 235-240.
- Paglia, G., Buckley, C.E., Rohl, A.L., Hart, R.D., Winter, K. & Studer, A.J. 2004. Boehmite Derived γ -Alumina System. 1. Structural Evolution with Temperature, with

- the Identification and Structural Determination of a New Transition Phase, γ' -Alumina. *Chemistry of Materials*, 16 (2) : 220.
- Parida, K.M., Pradhan, A.C., Das, & Sahu, N., 2009. Synthesis and characterization of nano-sized porous gamma-alumina by control precipitation method. *Mater. Chem. Phys.* 113: 244–248.
- Renuka, N. K., A. V. Shijina, & A. K. Praveen. 2012. Mesoporous γ -Alumina nanoparticles : Synthesis, Characterization and Dye Removal Efficiency. *Material Letters*. 9: 673-635.
- Sunardi, Y. Aryanto, & Sutarno. 2009. Adsorption of gibberellic acid onto natural kaolin from Tatakan, South Kalimantan. *Indo. J. Chem.* 9(3): 373-379.
- Tan, K.H. 1995. *Dasar-dasar Kimia Tanah*, Edisi 4. Universitas Gajah Mada Press. Yogyakarta.
- Ulyani, V. 2008. *Reaksi Katalisis Oksidasi Vanili Menjadi Asam Vanilat Menggunakan Katalis $TiO_2Al_2O_3$ (1:1) yang Dibuat dengan PEG 6000*. Skripsi. Universitas Indonesia. Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam.
- Utari, T. 1994. *Pembuatan Adsorben Alumina Dari Kaolin*. Tesis. Fakultas Pascasarjana, Universitas Indonesia, Depok.
- Wang, Y.H., J. Wang, M.Q. Shen, & W.L. Wang. 2009. Synthesis and Properties of Thermostable γ -Alumina Prepared by Hydrolysis of Phosphide Aluminum. *Journal of Alloys and Compounds*. 467(1-2): 405-412.
- Yang, H., M. Liu, & J. Ouyang. 2010. Novel synthesis and characterization of nanosized γ - Al_2O_3 from kaolin. *Applied Clay Science*. 47: 438-443.