

THE INFLUENCE OF Si/Al MOLE RATIO OF PRECURSOR SOLUTION ON THE STRUCTURAL PROPERTIES OF MCM-41 FROM FLY ASH

Pengaruh Rasio Mol Si/Al Larutan Prekursor pada Karakter Struktur MCM-41 dari Abu Layang

Sutarno, Yateman Arryanto and Stefani Wigati

Chemistry Department, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Gadjah Mada University, Yogyakarta

ABSTRACT

The synthesis of MCM-41 from fly ash was done hydrothermally at 100°C for 72 hours using supernatant of fly ash solution, sodium silicate, tetramethylammonium hydroxide (TMAOH) and cetyltrimethyl-ammonium hydroxide (CTMAOH) surfactants. The effect of Si/Al mole ratio of precursor solution on the structural properties of MCM-41 was studied by variation of the volume composition of supernatant and sodium silicate. The surfactant was removed by calcination at 550°C for 5 hours with heating rate 2°C/minute. The as-synthesized products were characterized by X-ray diffraction, infrared spectroscopy, and nitrogen adsorption methods. The XRD pattern proved that the samples were MCM-41 and the higher the Si/Al mole ratio of precursor solution resulted MCM-41 with higher crystallinity. Calcination was able to remove the CTMAOH surfactant. It was identified by the disappearance of the peak at 3000-2850 cm^{-1} , which is characteristic for CTMAOH. The XRD pattern of calcined MCM-41 showed the decrease of d_{spacing} and the increase of crystallinity. MCM-41 synthesized with Si/Al mole ratio of precursor solution=44.5 showed the highest crystallinity and has specific surface area=694.5 m^2/g , average pore diameter=35Å and pore wall thickness=13.6Å.

Keywords: fly ash, Si/Al mole ratio, MCM-41, crystallinity.

PENDAHULUAN

MCM-41 disintesis pertama kali oleh para peneliti dari Mobil Corporation pada tahun 1992 dengan menggunakan bahan murni [1]. Chang *et al.* [2] dan Sutarno *et al.* [3] menyatakan bahwa MCM-41 dapat disintesis dari abu layang. Abu layang merupakan limbah padat pembakaran batubara pada Pembangkit Listrik Tenaga Uap (PLTU) dan mempunyai komponen utama berupa SiO_2 dan Al_2O_3 . Chang *et al.* [2] berhasil mensintesis MCM-41 dengan menggunakan supernatan hasil leburan abu layang sebagai sumber Si dan Al. MCM-41 hasil sintesisnya mempunyai rasio Si/Al=13,4. Dalam penelitiannya, Sutarno *et al.* [2] menggunakan supernatan hasil leburan abu layang sebagai sumber Si dan Al serta natrium silikat sebagai sumber silikat tambahan tanpa memperhitungkan rasio mol Si/Al dalam sistem sintesisnya.

Dalam sintesis MCM-41 dari bahan murni, pengaruh rasio mol Si/Al dalam MCM-41 hasil sintesis telah banyak dikaji di antaranya adalah yang dilakukan oleh Schmidt *et al.* [4] dan Luan *et al.* [5]. Schmidt *et al.* [4] menyelidiki pengaruh

jumlah Al terhadap ukuran pori dan luas permukaan MCM-41 dan diperoleh hasil bahwa semakin tinggi rasio Si/Al maka luas permukaan MCM-41 semakin besar dan ukuran porinya semakin kecil. Selanjutnya, Luan *et al.* [5] mengkaji pengaruh keberadaan Al yang berbeda terhadap kristalinitas bahan mesopori. Dari kajian ini diketahui bahwa semakin kecil rasio Si/Al keteraturan kristal mesopori semakin menurun.

Sampai saat ini pengaruh rasio mol Si/Al dalam sintesis MCM-41 dari abu layang belum dikaji. Dalam penelitian ini dikaji tentang konversi abu layang menjadi MCM-41 dan pengaruh rasio mol Si/Al terhadap karakter struktur MCM-41 hasil sintesis seperti kristalinitas, jarak antar bidang dan ukuran pori.

Sintesis aluminosilikat mesopori dari abu layang dimulai dengan peleburan abu layang menggunakan NaOH. Peleburan dengan NaOH ini mengacu pada metoda peleburan Shigemoto *et al.* [6] yaitu menggunakan rasio NaOH/abu layang=1,2. Tujuan peleburan adalah untuk mendekomposisi komponen silika-alumina menjadi natrium silikat dan natrium aluminat. Fasa kristal silika dan alumina pada abu layang sebagian besar berada

dalam bentuk kuarsa dan mullit [3] suatu kristal yang cukup stabil pada perlakuan dengan larutan NaOH pada temperatur kamar. Peleburan abu layang dengan NaOH pada temperatur tinggi dapat mengubah komponen silika dan alumina menjadi garam natrium silikat dan aluminat yang lebih reaktif.

Prosedur sintesis aluminosilikat mesopori pada penelitian ini mengacu pada prosedur sintesis yang dilakukan Sutarno *et al.* [3]. Sintesis aluminosilikat mesopori dilakukan dalam suatu tempat reaksi yang tertutup sehingga pada penelitian ini digunakan autoklaf. Jika tempat reaksinya tidak tertutup rapat maka laju penguapan dan laju kondensasinya menjadi tidak seimbang yang berakibat tidak dapat dihasilkan MCM-41. Aluminosilikat mesopori fasa heksagonal (MCM-41) disintesis dengan mereaksikan supernatan hasil leburan abu layang sebagai sumber silikat dan aluminatnya serta natrium silikat sebagai sumber silikat tambahan. Dipilihnya natrium silikat sebagai sumber silikat tambahan karena natrium silikat bersesuaian dengan bentuk spesies silika yang dihasilkan dari proses peleburan abu layang. Rekayasa ukuran pori dilakukan dengan menggunakan surfaktan kationik setiltrimetilammonium hidroksida (CTMAOH) dan tetrametilammonium hidroksida (TMAOH).

METODA PENELITIAN

Peleburan abu layang

Abu layang yang digunakan pada penelitian ini berasal dari PLTU Suralaya, Serang-Banten. Abu layang yang lolos dengan ayakan ukuran 250 mesh dilebur dengan NaOH (rasio berat NaOH/abu layang=1,2) pada temperatur 550°C selama 1 jam. Hasil leburan ditambah dengan akuades kemudian disentrifugasi selama 5-10 menit. Supernatan dipisahkan dari padatnya dan ditampung untuk selanjutnya digunakan sebagai bahan dasar sintesis MCM-41.

Reaksi hidrotermal

Pengaruh rasio mol Si/Al larutan prekursor pada karakter struktur aluminosilikat mesopori hasil sintesis dipelajari dengan melakukan variasi komposisi volume supernatan dan natrium silikat dengan membuat volume total keduanya tetap yaitu 55 mL kemudian ditambah dengan surfaktan sebanyak 35 mL CTMAOH dan 10 mL TMAOH. Variasi komposisi volume (mL) supernatan dan natrium silikat adalah 55-0, 45-10, 35-20 dan 25-30 (rasio mol Si/Al secara berurutan adalah 9,8; 23,3; 44,5 dan 82,6).

Reaksi hidrotermal untuk masing-masing variasi tersebut dilakukan dalam autoklaf dengan

bejana teflon 120 mL. Campuran diaduk dengan pengaduk magnetik selama satu jam, selanjutnya pH sistem diatur hingga mencapai 11,5 dengan melakukan penambahan H₂SO₄ (1:1) sedikit demi sedikit. Campuran dipanaskan dalam oven (reaksi hidrotermal) pada temperatur 100°C selama 72 jam. Setelah dingin endapan yang terbentuk disaring dan dicuci dengan akuades hangat (60-70°C) sampai netral lalu dikeringkan.

Penghilangan surfaktan dengan metode kalsinasi

Kalsinasi dilakukan dengan memanaskan hasil sintesis yang diletakkan dalam cawan porselin dengan menggunakan *furnace* pada temperatur 550°C selama 5 jam dengan laju pemanasan sebesar 2°C/menit. Padatan hasil kalsinasi selanjutnya dikarakterisasi menggunakan FTIR, XRD dan adsorpsi nitrogen.

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Analisis difraksi sinar-X

MCM-41 mempunyai struktur seperti sarang lebah yang merupakan hasil penataan dari pori-pori silindris unidimensional secara heksagonal. Pola difraksi sinar-X MCM-41 menunjukkan tiga sampai lima refleksi pada 2θ antara 2-5°. Refleksi-refleksi tersebut dapat diindeks menurut sistem kristal heksagonal sebagai bidang [100], [110], [200], [210] dan [300]. Namun pada banyak kasus [7] hanya terdapat satu puncak karakteristik MCM-41 yang dapat dideteksi secara signifikan yaitu puncak bidang [100]. Pola difraksi sinar-X untuk MCM-41 tidak menunjukkan adanya puncak difraksi pada 2θ lebih besar dari 6°, hal ini dikarenakan MCM-41 tidak bersifat kristalin pada tingkat atomiknya.

Dalam sintesis MCM-41, rasio mol Si/Al sangat berpengaruh terhadap karakter struktur seperti kristalinitas, diameter pori, tingkat keasaman dan stabilitas termal hasil sintesis. Dalam penelitian ini karakter struktur yang dikaji berupa kristalinitas, diameter pori, luas permukaan dan tebal dinding pori. Meskipun pengaruh rasio mol Si/Al tersebut cukup banyak namun hasil analisis difraksi sinar-X hanya dapat menjelaskan tentang pengaruh rasio mol Si/Al terhadap kristalinitas dan diameter pori hasil sintesis secara garis besar. Pola difraksi hasil sintesis pada berbagai variasi rasio mol Si/Al larutan prekursor disajikan dalam Gambar 1.

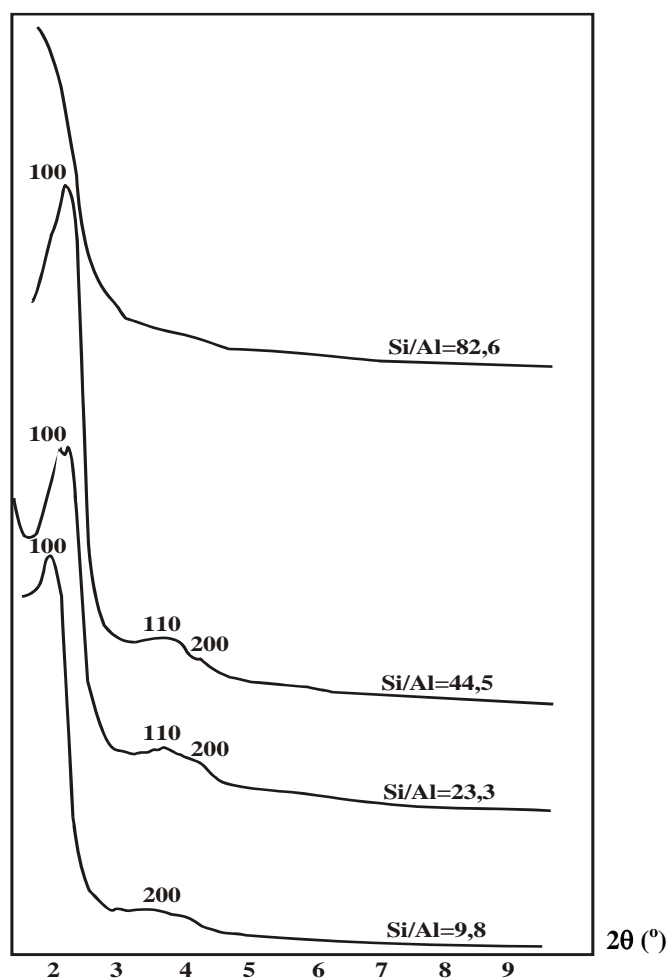
Dari Gambar 1 terlihat bahwa pola difraksi sinar-X hasil sintesis memunculkan puncak utama pada $2\theta \sim 2^\circ$ dan puncak-puncak kecil pada daerah $2\theta \sim 3-5^\circ$ namun tidak memunculkan puncak pada sudut yang lebih besar dari 6°. Munculnya puncak pada sudut-sudut kecil tersebut mengindikasikan

bahwa hasil sintesis mempunyai harga jarak antar bidang yang besar. Secara umum hasil sintesis memberikan pola difraksi sama dengan pola difraksi aluminosilikat mesopori MCM-41 sebagaimana telah dilaporkan oleh Beck *et al.* [1] dan Chang *et al.* [2]. Selain itu, puncak-puncak tersebut juga dapat diindeks menurut sistem kristal heksagonal (Tabel 1). Munculnya puncak pada sudut-sudut kecil dan dapat terindeksnya puncak-puncak tersebut menurut sistem heksagonal membuktikan bahwa hasil sintesis merupakan MCM-41.

Pola difraksi sinar-X pada Gambar 1 menunjukkan terbentuknya MCM-41 pada berbagai variasi rasio mol Si/Al larutan prekursor. Semakin tinggi rasio mol Si/Al larutan prekursor menghasilkan MCM-41 dengan kristalinitas semakin tinggi (Tabel 1). Gambar 1 dan Tabel 1 menunjukkan bahwa MCM-41 dapat disintesis pada rasio mol Si/Al yang relatif rendah yaitu 9,8 dimana Si dan Al hanya berasal dari supernatan hasil leburan abu layang namun keteraturan

kristalnya masih rendah terlihat dengan kurang sempurnanya bidang-bidang kristal MCM-41 hasil sintesis. Fenomena ini terlihat dengan tidak munculnya bidang 110 yang umumnya muncul pada MCM-41 dengan keteraturan kristal yang tinggi. Ketika rasio mol Si/Al prekursor dinaikkan dengan menambahkan natrium silikat (rasio mol Si/Al prekursor=23,3-44,5), keteraturan kristal MCM-41 hasil sintesis semakin meningkat.

Pada rasio mol Si/Al larutan prekursor = 82,6, MCM-41 justru tidak terbentuk yang ditandai dengan tidak munculnya puncak yang teratur untuk suatu sistem kristal heksagonal. Pada kisaran rasio mol Si/Al prekursor=9,8-44,5, rasio mol Si/Al prekursor berpengaruh terhadap keteraturan kristal mesopori namun tidak berpengaruh terhadap struktur atau bentuk kristal mesopori. Meskipun rasio mol Si/Al tidak berpengaruh terhadap struktur aluminosilikat mesopori hasil sintesis, namun rasio mol Si/Al tersebut sangat berpengaruh terhadap kristalinitas MCM-41 hasil sintesis.



Gambar 1 Pola difraksi sinar-X hasil sintesis pada berbagai rasio mol Si/Al larutan prekursor

Tabel 1 Data karakter struktur hasil sintesis pada berbagai variasi rasio mol Si/Al larutan prekursor

Rasio mol Si/Al prekursor	Data difraksi sinar-X				Data adsorpsi		W (Å)
	d (Å)	hk0	a (Å)	Kristalinitas MCM-41 (%) [*]	D (Å)	S _A (m ² /g)	
9,8	44,01 22,64 21,53	100 200 tt	50,8 52,3 -	63,4	td	td	td
23,3	42,18 23,36 20,53	100 110 200	48,7 46,7 47,4	77,3	34,8	293,5	13,9
44,5	42,14 23,07 20,44	100 110 200	48,6 46,1 47,2	100	35	694,5	13,6
82,6	42,75 20,37 29,38	tt tt tt	- - -	-	td	td	td

Keterangan: d=jarak antar bidang; a=parameter kisi; *relatif terhadap kristalinitas tertinggi; D=diameter pori rata-rata; S_A=luas permukaan spesifik; W=tebal dinding pori ($W = a_0 - D$) dimana a_0 adalah a pada bidang 100; tt=tidak terindeks; td= tidak ditentukan

Secara umum dari Tabel 1 dapat dinyatakan bahwa semakin tinggi rasio mol Si/Al larutan prekursor menghasilkan MCM-41 dengan kristalinitas yang semakin tinggi. Kenaikan rasio mol Si/Al larutan prekursor menyebabkan meningkatnya kristalinitas MCM-41 hasil sintesis karena interaksi antara Si dengan surfaktan lebih baik dibanding interaksi Al dengan surfaktan. Hal ini dikarenakan pada pH tinggi (pH larutan prekursor=11,5) Si berada dalam bentuk spesies anionik yang mempunyai muatan negatif lebih besar dibanding Al [9-11]. Semakin tinggi rasio mol Si/Al pembentukan mesofasa semakin mudah sehingga semakin meningkatkan kristalinitas. Kristalinitas paling tinggi ditunjukkan oleh MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=44,5 sedangkan pada rasio mol Si/Al prekursor=82,6 tidak dihasilkan MCM-41. Hal ini dikarenakan meskipun rasio Si/Al-nya paling tinggi namun konsentrasi ion Na larutan prekursornya juga paling tinggi. Konsentrasi ion Na yang tinggi di larutan prekursor akan menyebabkan lebih disukainya pembentukan zeolit (aluminosilikat mikropori) yang dapat menghambat terbentuknya MCM-41 [2]. Terhambatnya pembentukan MCM-41 ini dikarenakan terjadinya kompetisi antara Na⁺ dan surfaktan (CTMA⁺) dalam fungsinya sebagai zat pengarah struktur.

Kemungkinan lain penyebab tidak terbentuknya MCM-41 pada rasio mol Si/Al prekursor=82,6 adalah kurangnya jumlah molekul surfaktan yang ada dalam sistem reaksi. Semakin tinggi rasio mol Si/Al dalam reaktan maka surfaktan yang terikat pada aluminosilikat hasil sintesis juga

semakin banyak. Hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=82,6 mempunyai rasio mol Si/Al yang paling tinggi namun jumlah surfaktan yang ditambahkan ke dalam sistem reaksinya sama dengan jumlah surfaktan yang ditambahkan pada sampel dengan rasio mol Si/Al yang lebih rendah. Jadi ada kemungkinan bahwa jumlah surfaktan yang tersedia masih belum mencukupi.

Selain berpengaruh terhadap kristalinitas hasil sintesis, rasio mol Si/Al larutan prekursor yang berbeda juga berpengaruh terhadap ukuran pori. Atom Al mempunyai ukuran yang lebih besar dari Si sehingga makin banyak jumlah Al larutan prekursor diharapkan akan dihasilkan aluminosilikat mesopori dengan ukuran yang semakin besar. Beck *et al.* [1] telah membuktikan adanya hubungan yang linier antara d_{100} dengan diameter pori rata-rata pada bahan mesopori heksagonal. Dari tabel 1 terlihat bahwa rasio mol Si/Al larutan prekursor semakin tinggi menghasilkan MCM-41 dengan d_{100} semakin kecil.

Analisis spektroskopi inframerah

Surfaktan berfungsi sebagai zat pengarah struktur dan cetakan dalam sintesis bahan anorganik berpori. Dengan menghilangkan surfaktan, maka akan dihasilkan material berpori dengan ukuran pori yang sesuai dengan surfaktan yang digunakan. Metoda penghilangan surfaktan yang dilakukan dalam sintesis ini adalah metoda kalsinasi [1]. Kalsinasi dilakukan dengan memanaskan sampel pada temperatur 550°C selama 5 jam dengan laju kenaikan temperatur sebesar 2°C/menit. Hilangnya surfaktan dari

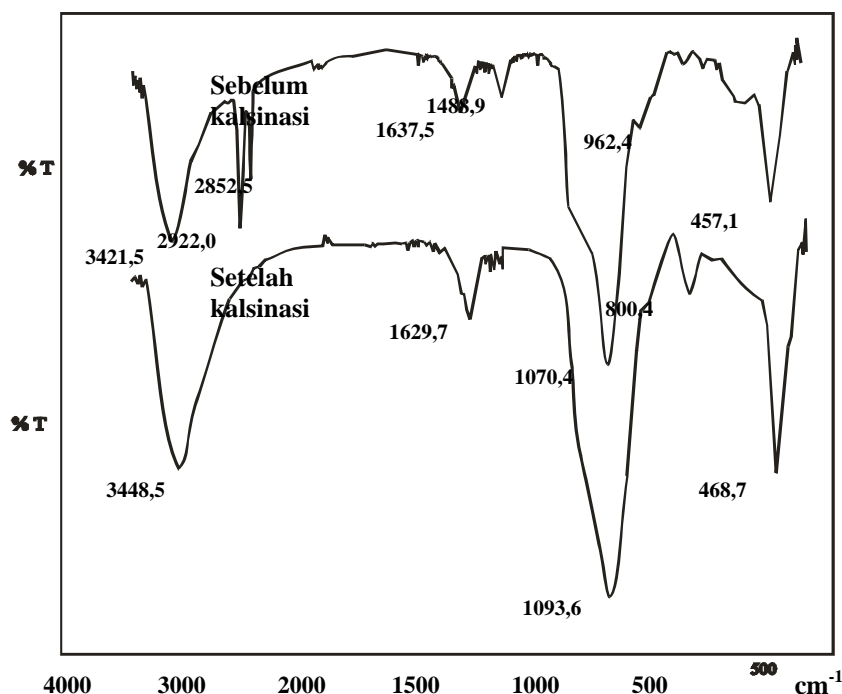
aluminosilikat mesopori (MCM-41) hasil sintesis dapat diamati dengan menggunakan metoda spektroskopi inframerah karena surfaktan $C_{16}TMA^+$ memberikan puncak-puncak yang spesifik pada daerah bilangan gelombang 3000-2700 cm^{-1} . Spektra inframerah hasil sintesis sebelum dan setelah kalsinasi dalam Gambar 2.

Gambar 2 menunjukkan bahwa setelah dilakukan kalsinasi, puncak pada 2922,0 cm^{-1} yang merupakan vibrasi ulur simetris C-H pada $-CH_2-$ dan 2852,5 cm^{-1} yang merupakan vibrasi ulur asimetris C-H pada $N-CH_3$ sudah tidak muncul lagi. Ketidakhadiran puncak pada daerah tersebut menunjukkan bahwa surfaktan telah benar-benar hilang setelah proses kalsinasi. Hal ini sesuai dengan penelitian Alba *et al.* [8] yang mengemukakan bahwa serapan inframerah di daerah 3000-2850 cm^{-1} merupakan karakter vibrasi ν_{C-H} dari CTMAOH.

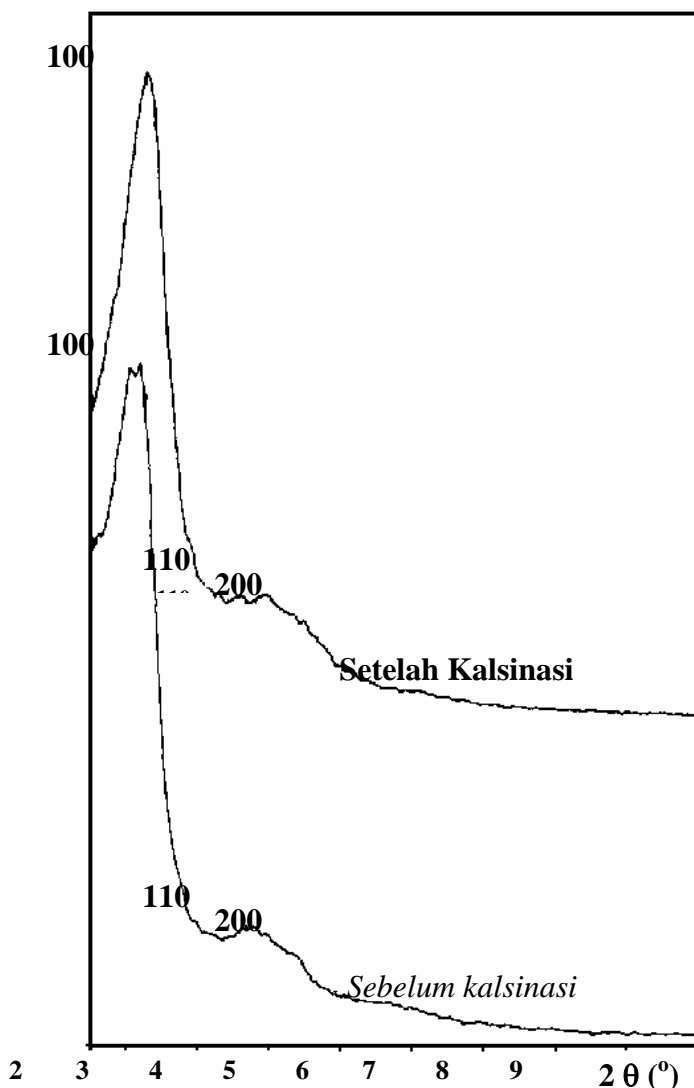
Selain untuk mengidentifikasi hilangnya surfaktan karena kalsinasi, spektrofotometri inframerah juga dapat memberikan informasi mengenai karakter vibrasi ikatan penyusun struktur aluminosilikat mesopori. Hal ini dikarenakan vibrasi pada ikatan T-O (T= Si, Al) di dalam polimer tersebut memberikan spektra khas pada daerah inframerah tengah yaitu pada 1250-300 cm^{-1} .

Vibrasi ikatan T-O yang terjadi meliputi vibrasi T-O di dalam tetrahedral TO_4 (disebut vibrasi internal) dan vibrasi pada ikatan antar tetrahedral tersebut (disebut vibrasi eksternal).

Pita vibrasi pada 1070,4 cm^{-1} untuk MCM-41 sebelum kalsinasi dan 1093,6 cm^{-1} untuk MCM-41 hasil kalsinasi menyatakan vibrasi asimetris (ν_{as}) TO_4 . MCM-41 silika murni memberikan vibrasi untuk asimetris ν_{as} (Si-O-Si) pada 1085 cm^{-1} . Terjadinya pergeseran serapan dari 1074,4 cm^{-1} pada MCM-41 sebelum kalsinasi menjadi 1093,6 cm^{-1} setelah kalsinasi menunjukkan naiknya rasio Si/Al akibat berkurangnya tetrahedral alumina dalam kerangka struktur MCM-41 hasil sintesis karena proses kalsinasi. Pita vibrasi pada 800,4 cm^{-1} merupakan pita vibrasi ulur simetris dari TO_4 dalam MCM-41 hasil sintesis. Dalam kajiannya, Alba *et al.* [8] memperoleh MCM-41 silika murni dengan karakter vibrasi ulur simetris ν_s (Si-O-Si) di daerah 801 cm^{-1} . Pita vibrasi tekuk TO_4 pada MCM-41 hasil sintesis dinyatakan dengan munculnya puncak pada daerah 450-470 cm^{-1} . Secara keseluruhan, spektra inframerah dapat memberikan informasi tentang hilangnya surfaktan dan naiknya rasio Si/Al dalam MCM-41.



Gambar 2 Spektra inframerah MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=44,5 sebelum dan setelah kalsinasi



Gambar 3 Pola difraksi sinar-X MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=44,5 sebelum dan setelah kalsinasi

Tabel 2 Data intensitas total, d_{100} dan parameter kisi untuk MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor = 23,3 sebelum dan setelah kalsinasi

Sampel	Intensitas total (counts)	d_{100} (Å)	a_0 (Å)*
Sebelum kalsinasi	1610	42,18	48,7
Setelah kalsinasi	1868	39,85	46,0

* $a_0 = 2d_{100} / \sqrt{3}$

Pengaruh kalsinasi terhadap struktur MCM-41 hasil kalsinasi diamati lebih lanjut dengan metoda difraksi sinar-X. Pola difraksi sinar-X dari aluminosilikat mesopori hasil sintesis setelah kalsinasi disajikan dalam Gambar 3. Dari Gambar

3 terlihat bahwa kalsinasi yang dilakukan mengakibatkan terjadinya kenaikan kristalinitas yang ditunjukkan dengan semakin tingginya puncak difraksi sinar-X yang diperoleh. Kenaikan kristalinitas hasil sintesis tersebut disebabkan oleh

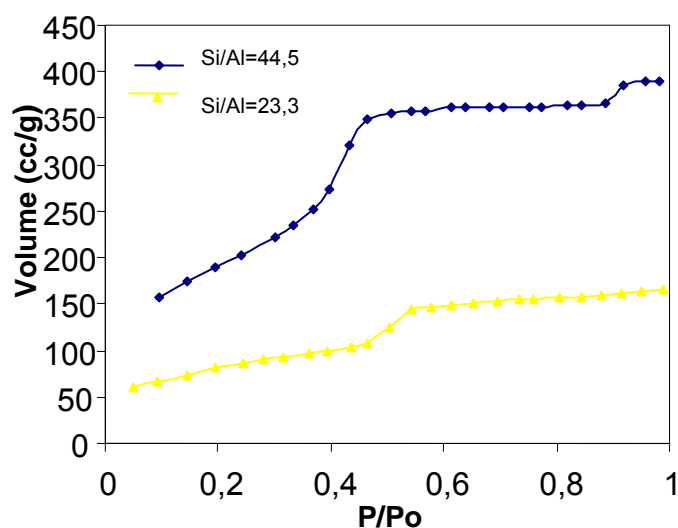
terjadinya penataan ulang batang-batang silikat yang belum teratur membentuk sistem heksagonal yang lebih teratur. Selain itu, kalsinasi juga menurunkan harga jarak antar bidang atau menyebabkan terjadinya pengkerutan pori sebagai akibat hilangnya molekul surfaktan yang berfungsi sebagai cetakan dan naiknya rasio Si/Al sebagaimana ditunjukkan oleh spektra inframerah dalam Gambar 2. Hal ini didukung dengan bergesernya harga 2θ pada difraktogram hasil analisis ke arah 2θ yang lebih besar. Penurunan jarak antar bidang dengan naiknya rasio Si/Al ini sesuai dengan hasil yang diperoleh Beck *et al.* [1] yang menyatakan bahwa semakin tinggi rasio Si/Al menyebabkan penurunan jarak antar bidang kristal.

Untuk memperjelas pengaruh kalsinasi terhadap peningkatan kristalinitas dan penurunan harga jarak antar bidang (d_{100}) maka pada Tabel 2 disajikan data kristalinitas dalam bentuk intensitas total dan d_{100} MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 baik sebelum maupun setelah kalsinasi. Dari Tabel 2 terlihat bahwa setelah kalsinasi MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 mengalami peningkatan intensitas dari 1610 menjadi 1868 atau meningkat sebesar 16,0% dan mengalami penurunan harga d_{100} dari 42,18Å menjadi 39,85Å. Dari data ini dapat disimpulkan bahwa kalsinasi yang dilakukan untuk MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 dalam penelitian ini tidak menyebabkan terjadinya kerusakan struktur.

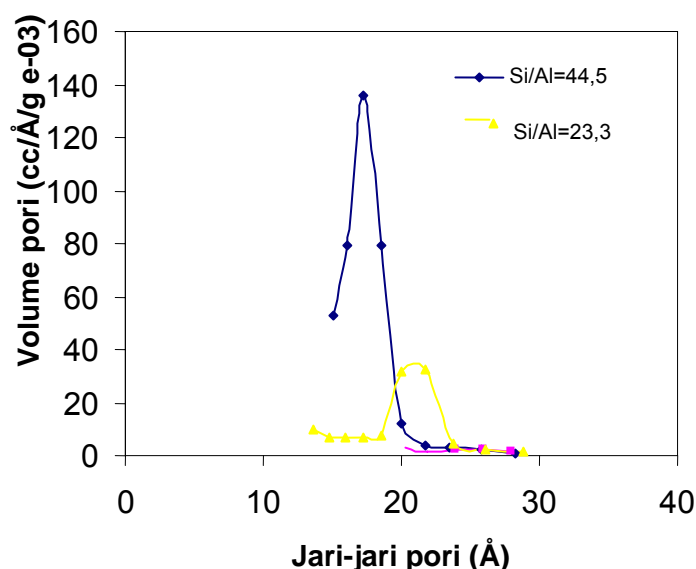
Analisis adsorpsi nitrogen

Metoda yang paling banyak digunakan dalam penentuan luas permukaan suatu padatan adalah metoda Brunauer-Emmet-Teller (BET). Metoda ini didasarkan pada suatu model kinetik dari proses adsorpsi Langmuir. Metoda adsorpsi juga banyak digunakan untuk menentukan luas permukaan dan distribusi ukuran pori suatu padatan katalis. Hal inilah yang menjadi alasan mengapa adsorpsi isothermal dan pola distribusi pori merupakan kajian penting dalam karakterisasi bahan mesopori.

Pada penelitian ini analisis adsorpsi nitrogen hanya dilakukan untuk MCM-41 dengan rasio mol Si/Al=23,3 dan 44,5. Pola adsorpsi isothermal MCM-41 dengan rasio mol Si/A=23,3 dan 44,5 disajikan dalam Gambar 4. Dari Gambar 4 dapat dinyatakan bahwa pola adsorpsi isothermal MCM-41 mengikuti adsorpsi Langmuir tipe IV. Adsorpsi pada tekanan relatif (P/P_0) sangat rendah menunjukkan adsorpsi monolayer dari nitrogen pada dinding mesopori dan tidak menunjukkan adanya material mikropori. Garis horizontal di dekat tekanan jenuh ($P/P_0=1$) menunjukkan bahwa seluruh mesopori telah terisi adsorbat cair. Pada Gambar 4 terlihat bahwa pola adsorpsi isothermal MCM-41 mempunyai titik infleksi pada P/P_0 antara 0,4 sampai 0,5. Hasil ini bersesuaian dengan MCM-41 yang dikemukakan oleh Zhao *et al.* [7].



Gambar 4 Pola adsorpsi isothermal MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=23,3 dan 44,5



Gambar 5 Pola distribusi pori MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=23,3 dan 44,5

Kajian tentang tingkat keseragaman pori sangat penting dalam sintesis padatan mesopori karena keseragaman pori sangat menentukan kualitas padatan tersebut untuk aplikasi lebih lanjut. Kajian tingkat keseragaman pori dapat dilakukan dengan melihat pola distribusi pori yang diperoleh dari analisis adsorpsi nitrogen. Pola distribusi pori MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 dan 44,5 disajikan dalam gambar 5. Dari Gambar 5 terlihat bahwa tingkat keseragaman pori MCM-41 hasil sintesis cukup tinggi yang ditandai dengan pola distribusi pori yang tidak melebar. Diameter pori rata-rata untuk MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 dan 44,5 masing-masing adalah 34,8Å dan 35Å. Walaupun harga diameter porinya hampir sama namun MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=44,5 memiliki distribusi pori yang lebih homogen.

Dari data parameter kisi pada bidang 100 (a_0) yang diperoleh dari analisis difraksi sinar-X dan harga diameter pori rata-rata dari adsorpsi nitrogen (D) dapat ditentukan harga ketebalan dinding pori yaitu dengan menghitung selisih antara keduanya (Tabel 1). Tebal dinding pori untuk MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 dan 44,5 masing-masing adalah 13,9Å dan 13,6Å sedangkan harga luas permukaan spesifik masing-masing adalah 293,5 m²/g dan 694,5 m²/g. Harga luas permukaan spesifik yang sangat berbeda ini mungkin disebabkan oleh masih rendahnya homogenitas distribusi pori dan kristalinitas MCM-

41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=23,3 bila dibandingkan dengan MCM-41 dengan rasio mol Si/Al prekursor=44,5.

KESIMPULAN

Pada sintesis MCM-41 dari abu layang dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=9,8-44,5, semakin tinggi rasio mol Si/Al larutan prekursor menghasilkan MCM-41 dengan kristalinitas semakin tinggi. MCM-41 hasil sintesis dengan rasio mol Si/Al larutan prekursor=44,5 menunjukkan kristalinitas tertinggi dan memiliki diameter pori rata-rata=35Å, tebal dinding pori=13,6Å dan luas permukaan spesifik=694,5 m²/g.

DAFTAR PUSTAKA

1. Beck, J. S., Vartuli, C., Roth, W. J., Leonovicz, M. E., Kresge, C. T., Schmitt, K. D., Chu, C. T.-W., Olson, D. H., Sheppard, E. W., McCullen, S. B., Higgins, J. B., and Schlenker, J. L., 1992, *J. Am. Chem. Soc.*, 114(27), 10834-10843
2. Chang, H. L., Chun, C.-M., Aksay, I. A., and Shih, W.-H., 1999, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 38, 973-977
3. Sutarno, Arryanto, Y., Setiaji, B., Webb, J., 2000, Sintesis Aluminosilikat Mesopori dari Abu layang, Prosiding Seminar Nasional Lustrum IX, FMIPA-UGM, Yogyakarta, 154-165
4. Schmidt, R., Akporiaye, D., Stocker, M., and Ellastad, O. H., 1994, *Studies in Surface Science and Catalysis*, 84, 61-68

5. Luan, Z., Cheng, C. F., Zhou, W., and Klinowski, J., 1995, *J. Phys. Chem.*, 99, 1018-1024
6. Shigemoto, N. , Hayashi, H. , and Miyaura, K., 1993, *J. Mater. Sci. ,* 28, 4781-4786
7. Zhao, X. S., Lu, G. Q., and Millar, G.J., 1996, *Ind. Eng. Chem. Res*, 35, 2075-2090
8. Alba, M. D., Luan, Z., and Klinowski, J., 1996, *J. Phys. Chem.*, 100, 2178-2188
9. Swaddle, T. W., Salerno, J., and Tregloan, P. A., 1995, *Chem. Soc. Rev.*, 319-325
10. McCormick, A. V. and Bell, A. T., 1989, *Catal. Rev.Sci. Eng.*, 31, 97-127
11. Kinrade, S. D. and Swaddle, T. W., 1988, *Inorg. Chem.*, 27, 4253-4259