

**Studi Pembuatan Partikel Nanozeolite Menggunakan  
Template (Tetra Metil Amonium Hidroksida) TMAOH serta  
Aplikasinya Sebagai Sensor Arsen**

Skripsi ini diajukan sebagai salah satu syarat  
untuk memperoleh gelar sarjana sains

Oleh :

**MARLIANA SUTEJA**

0606040394

MILIK PERPUSTAKAAN  
FMIPA - UI



Universitas Indonesia  
Perpustakaan

DEPARTEMEN KIMIA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

UNIVERSITAS INDONESIA

DEPOK

2008

PERPUSTAKAAN  
FAKULTAS MIPA-UI

Studi Pembuatan ~~ok~~ Marliana Suteja, FMIPA UI, 2008

HANYA BACA DITEMPAT

SKRIPSI : STUDI PEMBUATAN PARTIKEL  
NANOZEOLITE  
MENGUNAKAN TEMPLATE (TETRA METIL  
AMONIUM HIDROKSIDA) TMAOH SERTA  
APLIKASINYA SEBAGAI SENSOR ARSEN

NAMA : MARLIANA SUTEJA

NPM : 0606040394

SKRIPSI INI TELAH DIPERIKSA DAN DISETUJUI

DEPOK, 22 DESEMBER 2008

Dr. IVANDINI TRIBIDASARI A.

PEMBIMBING I

Ir. WIDYASTUTI SAMADI, Msi.

PEMBIMBING II

Tanggal lulus ujian Sidang Sarjana :

Penguji I : Dr. rer. nat. Widajanti Wibowo

Penguji II : Dr. Yoki Yulizar

Penguji III : Dr. rer. nat. Agustino Zulys

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan atas kehadiran Allah SWT karena atas berkah dan rahmatnya, penulis dapat menyelesaikan penulisan skripsi yang berjudul "Studi Pembuatan Partikel Nanozeolite Menggunakan Template Tetra Metil Amonium Hidroksida (TMAOH), serta Aplikasinya sebagai Sensor Arsen" yang disusun sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana sains.

Dalam penulisan skripsi ini begitu banyak bantuan yang diberikan, oleh karena itu dengan segala kerendahan hati penulis ingin mengucapkan terima kasih kepada Mama, Papa, kakak, adik dan keluargaku atas doa, kesabaran, semangat dan dukungan baik moril maupun materil.

Penulis pun ingin mengucapkan terima kasih kepada :

1. Ibu Dr. Ivandini Tribidasari Anggraningrum selaku pembimbing I dan Ibu Ir. Widyastuti Samadi, Msi. selaku pembimbing II yang dengan sabar dan baik hati memberikan penyediaan bahan kimia, saran, arahan, semangat, motivasi serta diskusi yang sangat berharga bagi penulis selama penelitian berlangsung hingga tersusunnya skripsi ini dan penulis mohon maaf bila ada yang tidak berkenan di hati,
2. Ibu Dr. rer. nat. Widajanti Wibowo selaku ketua KBI Kimia Fisik yang selalu memberikan saran dan masukan yang berharga bagi penelitian ini,
3. Bapak Dr. Yoki Yulizar dan Ibu Dra. Tresye Utari, Msi. selaku dosen matakuliah Kimia Fisik, dan Bapak Dr. Janurzi Gunlazuardi yang telah memberikan arahan dan masukan yang sangat berguna bagi penulis,

4. Bapak Ir. Hedi Surahman, Msi. yang telah membantu dalam peminjaman alat Potensiotate, alat gelas serta pemesanan bahan kimia,
  5. Bapak Drs. Erzi Rizal Azwar selaku Pembimbing Akademis ,
  6. Bapak Dr. Ridla Bakri M.Phil selaku Ketua Departemen Kimia,
  7. Bapak Dr. Endang Saepudin dan Bapak Dr. Asep saefumillah selaku Ketua Jurusan program S1Ekstensi Kimia dan Sekretaris program S1Ekstensi Kimia,
  8. Mbak Ema, Mbak Cucu, Mbak Ina, Bapak Trisno, Mas Edi, Bapak Sukiri, Bapak Amin dan seluruh karyawan dan karyawan Departemen Kimia FMIPA UI,
  9. My InuYaSHa dan rekan-rekan seperjuangan, iNulina, Imael, Marnical, Weracha, Riza, Ratih, Puri, Wulan, Visti, Andi, Redi dan Alex yang selalu membuat penulis selalu tertawa dan berbagi suka dan duka selama penelitian,
  10. Dilleman, Hesti, Ratich, Gosha ekstensi Kimia angkatan 2004 dan teman-teman ekstensi angkatan 2006 yang tidak dapat disebutkan satu per satu.
- Terima kasih banyak atas kebersamaannya selama ini.

Demikian dengan segala kekurangan dan ketidaksempurnaan dalam skripsi ini, semoga skripsi ini tetap memberikan manfaat dan wawasan dalam ilmu pengetahuan.

Desember 2008

Penulis-

## ABSTRAK

Sintesis partikel nanozeolit dilakukan pada kondisi temperatur ruang, diaplikasikan sebagai sensor Arsen. Partikel nanozeolit yang terbentuk, ditempelkan pada permukaan elektroda *glassy carbon* (gc) dengan teknik *layer by layer* (LBL) menggunakan polielektrolit positif dan polielektrolit negatif, kemudian ion  $\text{Fe}^{3+}$  diimobilisasi kedalam rongga nanozeolit dengan pertukaran ion.

Metode yang digunakan untuk pengukuran Arsen adalah Voltametri Siklik dengan pencarian kondisi yang optimum untuk pengukuran. Variasi pengukuran yang dilakukan yaitu pH larutan Arsen, scan rate, jumlah layer, waktu perendaman larutan  $\text{Fe}^{3+}$ , konsentrasi Arsen, dan kestabilan elektroda yang telah dimodifikasi. Berdasarkan hasil optimasi pengukuran Arsen dengan elektroda gc-nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$ , didapat kondisi optimum untuk pH larutan Arsen pH 8, scan rate 80 mV/s, jumlah layer sebanyak 5 layer, waktu perendaman larutan  $\text{Fe}^{3+}$  selama 40 menit.

Kata kunci : Nanozeolit, Nanopartikel, Elektroda modifikasi zeolit, Teknik *layer by layer*, Tetramethylammonium hidroksida, Zeolit, Sensor Arsen, *glassy carbon*, dan Voltametri Siklik.

x + 60 hlm.; gbr.; lamp.

Bibliografi : 5 (1992 - 2008)

## DAFTAR ISI

	Halaman
KATA PENGANTAR .....	i
ABSTRAK .....	iii
DAFTAR ISI .....	iv
DAFTAR GAMBAR .....	vii
DAFTAR LAMPIRAN.....	ix
<b>BAB I PENDAHULUAN</b>	
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Masalah.....	2
1.3 Tujuan.....	3
<b>BAB II TINJAUAN PUSTAKA</b>	
2.1 Zeolit.....	4
2.1.1 Sifat Kimia Zeolit.....	6
2.1.2 Zat Pengarah.....	7
2.2 Nanopartikel .....	8
2.3 Nanozeolit.....	10
2.4 Sensor .....	12
2.5 Voltametri Siklik .....	12
2.6 Karbon .....	15
2.6.1 Elektroda Karbon.....	15

2.6.2 Glassy Carbon .....	16
2.7 Arsen .....	17
2.7.1 Siklus Perputaran Arsen.....	18
2.8 Instrumen.....	19

### BAB III PERCOBAAN

3.1 Alat dan Bahan .....	24
3.1.1 Alat .....	24
3.1.2 Bahan .....	25
3.2 Cara Kerja .....	26
3.2.1 Sintesis Nanozeolit.....	26
3.2.2 Pembuatan Larutan .....	26
3.2.3 Pembersihan Elektroda .....	28
3.2.4 Pembuatan Suspensi Nanozeolit.....	29
3.2.5 Modifikasi gc dengan Nanozeolit .....	29
3.2.6 Pengujian gc-nanozeolit-Fe <sup>3+</sup> metode Voltametri Siklik	30

### BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Sintesis Nanozeolit .....	32
4.2 Karakterisasi Nanozeolit dengan TEM.....	35
4.3 Modifikasi Elektroda gc dengan Nanozeolit .....	36
4.4 Dispersi Fe <sup>3+</sup> dalam Elektroda gc-nanozeolit.....	38
4.5 Pengujian Modifikasi gc dengan Voltametri Siklik .....	39
4.6 Optimasi Pengukuran Voltametri Siklik.....	40

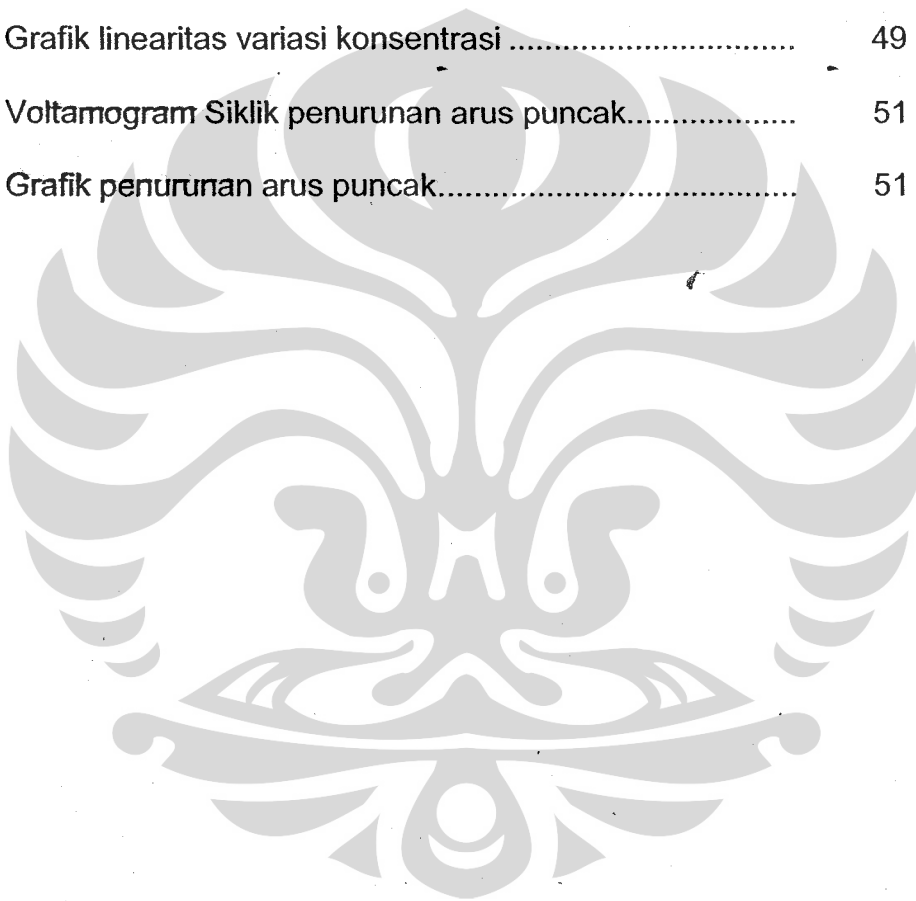
4.6.1 Variasi pH.....	40
4.6.2 Variasi Scan Rate.....	42
4.6.3 Variasi Jumlah Layer.....	44
4.6.4 Variasi Waktu Perendaman Fe <sup>3+</sup> .....	46
4.6.5 Variasi Konsentrasi.....	48
4.6.6 Penentuan Batas Deteksi.....	49
4.6.7 Pengujian Kestabilan.....	50
<b>BAB V KESIMPULAN DAN SARAN</b>	
5.1 Kesimpulan.....	52
5.2 Saran.....	53
<b>DAFTAR PUSTAKA.....</b>	<b>54</b>
<b>LAMPIRAN.....</b>	<b>57</b>



## DAFTAR GAMBAR

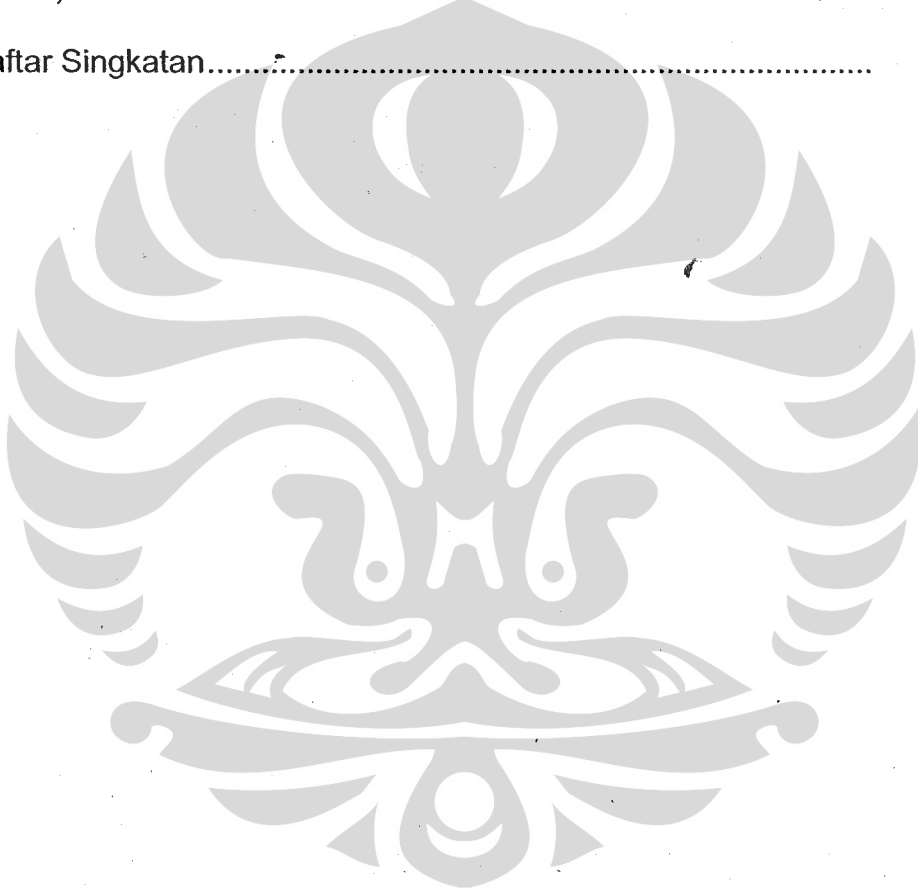
Gambar		Halaman
2.2.	Ukuran Material.....	10
2.3.	Struktur Nanofaujasit.....	11
2.4.	(a) Alat Potensiostate.....	14
	(b) Sel Elektrokimia.....	14
2.8.	(a) Alat Thermal Electron Microscope.....	20
	(b) Elektron Berkas Tunggal.....	21
	(c) Scanning Electron Microscope.....	22
4.1	(a) Proses pembentukan kristal nanozeolit.....	33
	(b) Proses sintesis partikel nanozeolit.....	34
	(c) Koloid nanozeolit.....	34
4.2	(a) Pengukuran TEM Perbesaran 20.000x.....	35
	(b) Pengukuran TEM Perbesaran 30.000x.....	35
	(c) Pengukuran dengan SEM.....	35
4.3	Modifikasi gc dengan nanozeolit melalui LBL.....	38
4.4	Dispersi Fe <sup>3+</sup> pada gc yang telah dimofikasi.....	38
4.5.	Voltamogram Siklik respon elektroda modifikasi.....	39
4.6.1	(a) Voltamogram Siklik variasi pH.....	41
	(b) Grafik Linearitas variasi pH.....	41
4.6.2.	(a) Voltamogram Siklik variasi Scan Rate.....	43

	(b) Grafik linearitas variasi scan rate.....	43
4.6.3.	(a) Voltamogram Siklik variasi jumlah layer.....	44
	(b) Grafik variasi jumlah layer.....	45
4.6.4	(a) Voltamogram Siklik variasi waktu perendaman Fe <sup>3+</sup> .....	47
	(b) Grafik variasi waktu perendaman Fe <sup>3+</sup> .....	47
4.6.5.	(a) Voltamogram Siklik variasi konsentrasi.....	48
	(b) Grafik linearitas variasi konsentrasi .....	49
4.6.7	(a) Voltamogram Siklik penurunan arus puncak.....	51
	(b) Grafik penurunan arus puncak.....	51



## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Skema kerja penelitian .....	57
2. Data tinggi arus penentuan kerva kalibrasi linier dan penentuan batas deteksi (LOD).....	58
3. Daftar Singkatan.....	60



# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Zeolit merupakan senyawa dengan struktur aluminasilikat, memiliki pori-pori yang diisi oleh kation atau molekul air yang dapat berpindah secara bebas sehingga zeolit memiliki kemampuan sebagai penukar ion [1]. Bentuk geometri primer zeolit adalah tetrahedral dengan atom pusatnya Si atau Al yang dikelilingi oleh empat buah atom Oksigen, dimana setiap atom Oksigen terikat pada dua buah bentuk tetrahedral. Pergantian  $\text{Si}^{4+}$  oleh  $\text{Al}^{3+}$  menyebabkan zeolit bermuatan negatif, hal ini dikarenakan pada umumnya  $\text{Al}^{3+}$  hanya melakukan tiga buah ikatan tetapi pada struktur zeolit melakukan empat buah ikatan sehingga terjadi kelebihan muatan. Kegunaan, sifat yang unik, dan kemudahan dimodifikasi, membuat penelitian mengenai zeolit berkembang pesat.

Perkembangan nanoteknologi memberikan peluang kepada para peneliti untuk berlomba-lomba dalam melakukan perubahan sifat atom atau molekul kearah yang lebih baik, bila dibandingkan dengan ukuran yang sebenarnya. Sampai saat ini, nanopartikel telah diaplikasikan dalam berbagai bidang seperti elektronik, kedokteran, industri kimia & kosmetik, kedirgantaraan bahkan kepentingan dibidang ekonomi. Dalam perkembangannya, prospek teknologi ini akan semakin meningkat seiring

dengan ditemukannya aplikasi-aplikasi baru lainnya.

Pada penelitian ini, dilakukan sintesis dan modifikasi partikel zeolit menjadi berukuran nano (yang disebut juga nanozeolit) sehingga zeolit tersebut memiliki luas permukaan yang lebih besar, ukurannya lebih uniform serta merubah sifat permukaan. Sintesis dilakukan dengan cara membatasi konsentrasi *template* dalam larutan, waktu sintesis dan temperatur sehingga struktur zeolit yang terbentuk terbatas pada ukuran nanometer.

Perbedaan perbandingan Si/Al, jenis *template* dan pH mempengaruhi hasil dan proses kristalisasi zeolit yang terbentuk. Nanozeolit yang terbentuk, kemudian dimodifikasi dengan cara merendam dalam larutan  $\text{Fe}^{3+}$  untuk mendispersikanya kedalam pori-pori nanozeolit, diharapkan nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  yang terbentuk akan memiliki kemampuan interaksi dengan Arsen dan dapat diaplikasikan sebagai sensor Arsen bila dilapisi pada elektroda *glassy carbon*.

## 1.2 Masalah

Pencemaran Arsen pada perairan semakin mengancam kesehatan masyarakat. Bila Arsen masuk dan terakumulasi didalam tubuh akan mengakibatkan gangguan sistem pernapasan, sistem sirkulasi darah, sistem reproduksi bahkan menyebabkan kematian.

### 1.3 Tujuan

- Sintesis nanozeolit pada temperatur ruang
- Nanozeolit yang terbentuk akan dilapisi pada elektroda *glassy carbon* dengan teknik *layer by layer* (LBL), selanjutnya akan diimobilisasi dengan ion  $\text{Fe}^{3+}$  melalui pertukaran ion dan diaplikasikan sebagai Sensor Arsen dengan metode Voltametri Siklik,
- Karakterisasi nanozeolit yang terbentuk dengan TEM.



## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Zeolit

Berdasarkan proses pembentukannya zeolit diklasifikasikan menjadi dua, yaitu:

##### a. Zeolit Alam

Zeolit alam merupakan zeolit yang terbentuk karena proses alam (Zeolitisasi), biasanya ditemukan dalam sedimen sebagai hasil alterasi debu-debu vulkanik (yang mengandung Si). Dalam proses sedimentasi tersebut mineral-mineral lain seperti felspar dan kwarsa juga ikut tercampur, sehingga membentuk kompleks zeolit yang tidak teratur dan tidak seragam.

##### b. Zeolit Sintetik

Zeolit Sintetik dapat dibuat pada kondisi Hidrotermal. Sistem Hidrotermal merupakan sistem tertutup dengan memakai air sebagai pelarut, sehingga menghasilkan tekanan uap air pada sistem tersebut.

Sifat zeolit sangat bergantung dari jumlah komponen Al dan Si. Berdasarkan perbandingan Si/Al, maka zeolit digolongkan berdasarkan empat klasifikasi :

- Zeolit Si rendah

Zeolit ini mempunyai pori-pori, komposisi, dan saluran rongga yang efektif digunakan untuk pemisahan atau pemurnian.

- Zeolit Si sedang

Zeolit jenis ini memiliki perbandingan kadar Si/Al antara 1-10, permukaannya memiliki selektifitas yang tinggi terhadap air dan molekul polar lainnya.

- Zeolit Si tinggi

Zeolit ini memiliki perbandingan kadar Si/Al yang tinggi antara 10-100, bahkan lebih, memiliki sifat yang hidrofobik, menyerap molekul yang tidak polar atau berinteraksi lemah dengan air.

- Zeolit Si

Berbeda dengan zeolit kadar Si tinggi yang masih mengandung Al walau hanya sedikit. Zeolit ini tidak mengandung Al sama sekali dan tidak memiliki sisi kation, sehingga tidak dapat digunakan sebagai penukar kation.

Bahan utama dalam pembentuk zeolit adalah silika dan alumina yang berada dalam bentuk aktif [1]. Silika dapat diperoleh dari natrium silika, silika sol, silika gel, sedangkan alumina dapat diperoleh dari serbuk aluminium, natrium aluminat, aluminium sulfat, dan garam-garam aluminium lainnya. Bahan pembentuk zeolit lainnya adalah basa yang berupa garam-garam alkali serta air. Pada beberapa jenis zeolit dibutuhkan molekul-molekul pengarah (*template*) pada proses pembentukan strukturnya (Rollman 1984:110) [2].

Zeolit biasanya dibentuk dengan cara hidrotermal dan melalui proses hidrogel. Sistem hidrotermal merupakan sistem tertutup dengan memakai air sebagai pelarutnya, sedangkan proses hidrogel adalah proses kristalisasi gel natrium aluminasilikat dalam sistem hidrotermal tertutup pada suhu yang bervariasi antara suhu kamar sampai 200°C, biasanya suhu kristalisasi yang dipakai mendekati suhu titik didih air.



Sintesis hidrotermal zeolit berhubungan dengan konversi campuran senyawa silika dan aluminium, kation logam alkali, molekul organik dan air melalui larutan super jenuh alkalin menjadi kristal mikron aluminasilikat. Proses kimia kompleks ini disebut zeolitisasi. Pada umumnya proses sintesis zeolit dilakukan dengan mengatur kondisi seperti suhu, tekanan dan pH.

### 2.1.1 Sifat Kimia Zeolit

Zeolit memiliki tiga sifat penting yaitu kemampuannya dalam melakukan pertukaran ion, daya serap dan daya saring molekul serta aktivitas katalitik (Sutarti 1994: 4) [2].

Sifat zeolit sebagai penukar ion berkaitan dengan struktur zeolit yang berongga. Rongga ini biasanya berisi molekul air dan kation-kation yang dapat dipertukarkan. Selektifitas zeolit dalam melakukan pertukaran kation dipengaruhi oleh ukuran, kation, mobilisasi kation yang dipertukarkan dan ukuran rongga dalam zeolit.

Sifat zeolit sebagai adsorben dan penyaring molekul juga berkaitan dengan struktur zeolit. Dengan struktur berongga, zeolit mampu menyerap sejumlah molekul yang berukuran lebih kecil atau sesuai dengan ukuran rongganya. Selain itu juga, dehidrasi molekul air dalam zeolit juga mempengaruhi ukuran rongga yang memungkinkan zeolit berperan sebagai penyerap molekul. Zeolit merupakan media berongga cukup selektif digunakan sebagai penyaring molekul, mampu memisahkan molekul

berdasarkan perbedaan ukuran, struktur, dan polaritas dari molekul yang disaring.

Sifat zeolit sebagai katalis berkaitan dengan adanya pusat-pusat aktif pada zeolit yaitu dalam saluran antara zeolit. Akibatnya, proses katalitik hanya terjadi pada molekul-molekul yang melewati saluran. Pusat-pusat aktif tersebut terbentuk karena adanya daerah pada zeolit yang bersifat asam.

### 2.1.2 Zat Pengarah

Agar pembuatan zeolit berhasil maka digunakan senyawa organik basa atau garam dari basanya yang berfungsi sebagai zat pengarah (*template*). Zat pengarah adalah spesi kation yang ditambahkan kedalam media sintesis untuk mengarahkan polimerisasi atau pembentukan kerangka zeolit [2].

Pada tahun 1973, Flanigen menyatakan bahwa yang menentukan kristalisasi zeolit adalah spesi kation (zat pengarah) yang memegang peranan penting sebagai pengarah struktur pada kristalisasi zeolit. Zat pengarah yang digunakan dalam pembuatan nanozeolit ini adalah tetramethylammonium hidroksida yang merupakan senyawa amina. Mekanismenya meliputi pembentukan kompleks kation alkilamonium dengan silikat melalui interaksi ikatan Hidrogen antara kerangka Oksigen dengan alkilamonium [3].

Senyawa organik memiliki fungsi yang spesifik dan sensitif tergantung pada jenis zeolit (Rollman 1984: 116) [2]. Penambahan yang berlebihan pada campuran reaksi dapat menyebabkan perubahan, yaitu:

- a. Perubahan struktur zeolit yang diperoleh,
- b. Menghambat kecepatan kristalisasi.

## 2.2 Nanopartikel

Nanomaterial atau nanopartikel merupakan hasil dari rekayasa material pada tingkat molekuler sehingga ukurannya menjadi sangat kecil. Nanomaterial adalah semua partikel yang mempunyai ukuran pada skala 100 nm atau kurang [3,4].

Perubahan ukuran material menjadi skala nanometer dapat merubah sifatnya. Sifat fisik dan kimia dari nanomaterial akan sedikit berbeda dengan partikel besar (skala mikron), walaupun secara substansi sama. Beberapa sifat yang berubah meliputi warna, solubilitas, kekuatan, konduktivitas listrik, daya magnet, mobilitas dan reaktivitas [3]. Perubahan properti dari nanomaterial ini telah menjadi tujuan yang diinginkan dari rekayasa material, sehingga bisa menjadi suatu produk yang bermanfaat dan menguntungkan secara ekonomi.

Nanoteknologi merupakan istilah yang digunakan untuk menggambarkan teknologi yang berkaitan dengan materi super kecil (nano). Nanopartikel adalah bagian dari nanoteknologi yang mempelajari partikel

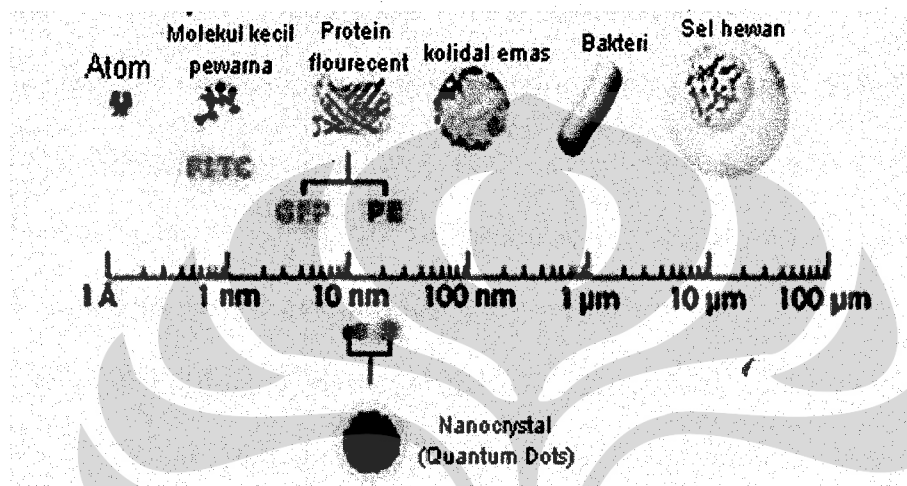
dengan ukuran 0.1 sampai 100 nanometer, biasanya disebut juga sebagai *ultrafine particles*.

Sifat-sifat nanopartikel sangat berbeda dengan *bulk* partikelnya. Sifat ini meliputi sifat elektrik, mekanik, magnetik maupun sifat optiknya [3].

Material dengan ukuran nano mempunyai keunggulan dalam sifat-sifat tertentu yang sangat menguntungkan untuk aplikasi spesifiknya. Sebagai contoh carbon nanotubes mempunyai kekuatan tarik 6 kali lebih kuat daripada baja, material Fospor  $Y_2O_3:Eu^{3+}$  mempunyai intensitas emisi 5 kali lebih kuat daripada bulk partikelnya (Sharma, P.K. et. al., 1999). Sampai saat ini, nanopartikel telah diaplikasikan dalam berbagai bidang seperti elektronik, kedokteran, industri kimia & kosmetik dan juga kedirgantaraan. Dalam perkembangannya, prospek teknologi ini akan semakin meningkat seiring dengan ditemukannya aplikasi-aplikasi baru lainnya.

Sejarah perkembangan nanoteknologi tidak lepas dari pengetahuan manusia tentang materi. Di awal abad ke-19, ilmuan menemukan fakta bahwa materi terdiri dari entitas yang terpisah yang disebut dengan atom. Feynman (1960) dalam artikelnya "There's plenty of room at the bottom" membahas tentang keuntungan yang mungkin dapat diperoleh bila kita dapat mengontrol struktur materi dalam skala atom.

Beliau mencontohkan bila dalam 1 bit informasi hanya membutuhkan 100 atom, maka satu buku hanya memerlukan sebuah kubik dengan ukuran 0,02 in x 0,02 in x 0,02 in saja untuk menyimpannya.



Gambar 2.2. Ukuran material

Karakterisasi nanopartikel dapat diketahui dengan instrumen seperti Electron Microscopy (SEM, TEM, dan STM), Atomic Force Microscope (AFM), Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), Powder X-ray Diffractometry, dan Small Angle X-ray Scattering (SAXS) [3,5,16].

### 2.3 Nanozeolit

Koloid nanozeolit memiliki ukuran kurang dari atau sama dengan 100 nm, memiliki keuntungan dibandingkan zeolit konvensional karena ukuran partikelnya yang kecil. Ukuran koloid memberikan sifat yang unik dan aplikasi yang luas, seperti sensor kimia, dan kedokteran [6].

Pengurangan ukuran partikel dari mikrometer menjadi nanometer merupakan perubahan penting didalam sifat dari material, dimana pengaruhnya kuat terhadap performa dalam aplikasinya sebagai katalis dan pemisahan.

Pembentukan kristal nanozeolit memerlukan kondisi yang baik untuk nukleasi pertumbuhan kristal. Biasanya menghasilkan ukuran partikel dibawah 100nm dengan distribusi partikel yang sempit. Pada kondisi ini, kehadiran kation alkali yang rendah membatasi agregasi pada partikel aluminasilikat yang bermuatan negatif [3].

Sintesis nanozeolit dipersiapkan dari suspensi alumina, silikat, ion alkali yang mengandung sejumlah besar kation tetraamonium pada temperatur ruang sampai dengan 130°C. Persentase produk yang dihasilkan biasanya hanya 10%, tingginya kandungan sodium dalam sintesa dapat menyebabkan waktu kristalisasi lebih singkat dan meningkatkan %yield [3].

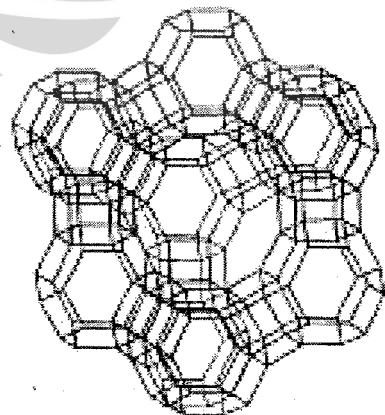
Gambar berikut adalah salah satu jenis zeolit tipe faujasit.



### Nano Faujasite

Template-free  
200-300 nm

Templated 80 nm



Gambar 2.3. Struktur nanofaujasit

## 2.4 Sensor

Sensor kimia merupakan suatu piranti yang melibatkan molekul pengenal yang dilekatkan sedekat mungkin atau terintegrasi dengan sebuah transduser menghasilkan sistem tanpa reagen, yang spesifik terhadap analit tertentu [7]. Transduser adalah alat yang dapat merubah proses pengenalan molekul terhadap suatu analit menjadi data elektrik. Hasil kerja alat tersebut dapat dibaca dan digunakan untuk mengidentifikasi jenis dan jumlah analit. Sinyal yang terbentuk selanjutnya dihubungkan dengan konsentrasi analit tersebut .

## 2.5 Voltametri Siklik

Metode voltametri siklik merupakan teknik yang luas digunakan untuk mendapatkan informasi kualitatif dari reaksi kimia, selain itu juga mampu memberikan informasi mengenai kecepatan termodinamika atau proses adsorpsi pada pasangan reaksi kimia [8]. Selama proses penyapuan potensial, potensiostat mengukur arus yang dihasilkan, plot antara arus versus potensial menghasilkan Voltamogram Siklik.

Berdasarkan sapuan potensial kerja, teknik voltametri dibagi menjadi dua, yaitu Linear Sweep Voltametry (LSV) dan Cyclic Voltammetry (CV). Pada LSV hanya dilakukan satu kali sapuan saja, sehingga informasi yang diperoleh hanya berupa informasi reduksi atau oksidasi saja. Pada CV dilakukan sapuan bolak-balik sehingga kedua informasi tersebut dapat diamati dengan baik. Reaksi yang terjadi dapat berupa reaksi reversibel,

irreversibel, atau quasireversibel. Besarnya arus puncak yang berlangsung pada reaksi ireversibel pada suhu 25°C dapat ditentukan dengan persamaan Randles-Sevcik [8] :

$$I_p = (2.99 \times 10^5)n(\alpha n_a)^{1/2} ACD^{1/2}v^{1/2}$$

Dimana  $I_p$  adalah arus puncak (A),  $n$  adalah jumlah elektron,  $A$  adalah luas permukaan elektroda ( $\text{cm}^2$ ),  $C$  adalah konsentrasi ( $\text{mol}/\text{cm}^3$ ),  $v$  adalah scan rate (V/s) dan  $D$  adalah koefisien difusi ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ).

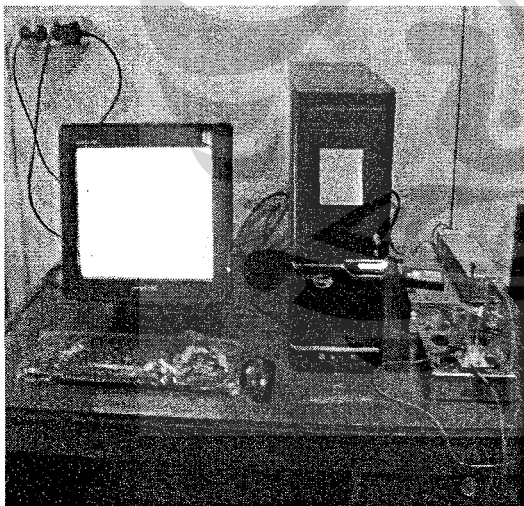
Pada penelitian ini, teknik Voltametri Siklik dilakukan dengan menggunakan tiga buah elektroda, yaitu elektroda kerja (working electrode), elektroda pembanding (reference electrode), dan elektroda pendukung (counter electrode). Elektroda kerja adalah elektroda tempat terjadinya reaksi oksidasi maupun reduksi. Elektroda ini umumnya terbuat dari logam, bahan semikonduktor, maupun karbon. Contoh elektroda logam yang dipakai seperti platina, emas, perak. Sedangkan elektroda karbon yang biasanya dipakai seperti *carbon pasta*, *glassy carbon*, dan *pyrolitic graphite*. Pada penelitian ini digunakan elektroda *glassy carbon* sebagai elektroda kerja yang dilapisi oleh nanozeolite- $\text{Fe}^{3+}$  dengan teknik *layer by layer* (LBL). Elektroda pembanding adalah elektroda yang potensialnya konstan dan dipakai sebagai elektroda standar terhadap potensial elektroda lainnya didalam sel elektrokimia.

Umumnya elektroda yang dipakai sebagai elektroda pembanding adalah *Standard Hydrogen Electrode* (SHE), *Calomel Electrode*, *Elektroda Ag/AgCl* dan *Pseudo-references* (kawat Pt atau Ag). Elektode pendukung adalah

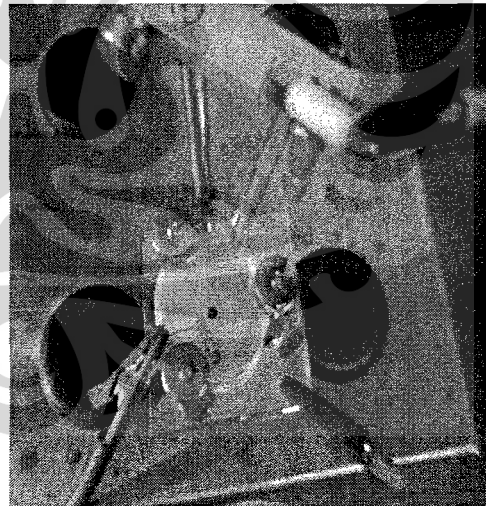


elektroda yang memiliki peranan sebagai sumber elektron yang akan mengalirkan elektron menuju elektroda kerja.

Untuk memperkecil hambatan dan efek matrik digunakan larutan elektrolit, seperti larutan buffer atau garam. Penggunaannya harus disesuaikan dengan kebutuhan analisa larutan, dengan syarat dapat menghantarkan arus listrik dan tidak mengganggu reaksi yang terjadi, selain itu perlu diperhatikan bahwa penggunaan yang berlebihan dapat mengurangi kontribusi migrasi terhadap transfer masa spesi elektroaktif. Berikut adalah gambar potensiostate dan sel elektrokimia untuk pengukuran metode Voltametri Siklik.



(a)



(b)

Gambar 2.4. (a) Alat Potensiostate (b) Sel elektrokimia

## 2.6 Karbon

Karbon merupakan unsur golongan IVA dengan nomor atom 6, memiliki konfigurasi  $1s^2 2s^2 2p^2$ . Titik lelehnya mencapai lebih dari  $350^\circ\text{C}$  dan massa atom relatifnya adalah  $12,011\text{g/mol}$ .

Karbon memiliki tiga buah bentuk allotropi (bentuk geometri) yaitu;

bentuk  $sp^3$  : Diamond (cubic), Lonsdaleite (hexagonal diamond), Aggregated diamond nanorods

bentuk  $sp^2$  : Graphite, Amorphous carbon, Fullerenes (buckyballs ( $\text{C}_{20+}$ ), nanotubes, nanobuds), glassy carbon, Carbon nanofoam

bentuk  $sp$  : Linear acetylenic carbon

### 2.6.1 Elektroda karbon

Salah satu jenis elektroda kerja padat adalah elektroda padatan. Materi yang biasanya dipakai biasanya platina, emas, perak, tembaga, dan karbon. Hal yang penting diperhatikan dalam penggunaan elektroda padat sebagai elektroda kerja adalah ketergantungan respon yang dihasilkan pada permukaan elektroda, oleh karena itu dibutuhkan treatment tertentu.

Berdasarkan jenis materialnya; untuk meningkatkan reproduksibilitas dari permukaan elektroda tersebut antara lain secara mekanik (polishing dengan menggunakan material abrasive), secara elektrokimia dengan menggunakan potensial *cycling* dan secara fisika dengan cara pemanasan pada suhu tertentu dan kondisi vakum atau sonikasi dalam pelarut tertentu.

Karbon berperan penting dalam perkembangan elektroda padat. Hal ini disebabkan:

- Murah dan mudah diperoleh,
- Kinetika oksidasi yang lambat sehingga memungkinkan penggunaan pada daerah potensial yang luas,
- Permukaan karbon yang kaya akan elektron sehingga dapat dimanfaatkan untuk menyelidiki pengaruh reaktivitas,
- Adanya kinetika transfer elektron dan adsorpsi pada permukaan karbon yang dapat dimanfaatkan secara luas untuk kepentingan analisis,
- Elektron stabil pada temperatur dan tekanan kamar, reproduksibel dan memiliki arus latar belakang kecil.

### 2.6.2 *Glassy carbon*

*Glassy carbon* (gc) disebut juga *vitreous carbon* yang merupakan kombinasi grafit antara sifat glass dan keramik. Elektroda gc memiliki karakteristik penting yaitu tahan temperatur tinggi, tahan terhadap pelarut kimia, dan memiliki sifat yang inert. Dalam bidang elektrokimia, gc digunakan luas sebagai elektroda karena memiliki sifat inert, konduktivitas termal yang baik, memiliki kisaran potensial yang luas, dan reproduksibel.

*Glassy carbon* dapat dibuat dengan karbonisasi dari bahan *resin moldeled/thermosetting polymeric* (formaldehid dan fenol) dalam keadaan

inert atmosfer atau vakum. Pada proses karbonisasi dilakukan secara perlahan-lahan lebih dari suhu 300-1200°C untuk menghilangkan Oksigen, Nitrogen, dan Hidrogen. Untuk membuat *glassy carbon* menjadi mengkilap seperti kaca maka dilakukan perlakuan awal pada permukaan dengan pengamplasan menggunakan alumina slurry kemudian disonikasi untuk menghilangkan sisa-sisa material abrasif.

## 2.7 Arsen

Arsen, arsenik, atau arsenikum adalah unsur kimia dalam tabel periodik yang memiliki simbol As dan nomor atom 33. Arsen merupakan bahan metaloid yang terkenal beracun dan memiliki tiga bentuk alotropik yaitu kuning, hitam dan abu-abu. Arsen dan senyawa Arsen digunakan sebagai pestisida, herbisida dan insektisida dan beragam alloy.

Secara kimiawi Arsen memiliki karakteristik yang serupa dengan Fosfor, dan sering digunakan sebagai pengganti dalam berbagai reaksi biokimia dan juga beracun. Ketika dipanaskan, Arsen akan cepat teroksidasi menjadi Oksida Arsen, yang berbau seperti bau bawang putih. Arsen dan beberapa senyawa Arsen juga dapat langsung tersublimasi, berubah dari padat menjadi gas tanpa menjadi cairan terlebih dahulu.

### 2.7.1 Siklus Perputaran Arsen

Secara alami logam mengalami siklus perputaran kerak bumi ke lapisan tanah, makhluk hidup, perairan, mengendap dan akhirnya kembali kedalam perut bumi. Kandungan alamiah logam berubah-ubah bergantung pada kadar pencemaran yang dihasilkan oleh manusia maupun yang dihasilkan oleh zat pencemar. Pengaruh pencemaran akibat ulah manusia lebih banyak berpengaruh dibandingkan terhadap pencemaran secara alami.

Di lingkungan Arsen bergabung dengan Oksigen, Klorin dan Sulfur untuk membentuk komponen Arsen anorganik. Bila terdapat pada hewan dan tumbuhan dapat bergabung dengan Karbon dan Hidrogen untuk membentuk komponen Arsen organik. Arsen tidak dapat dimusnahkan tetapi hanya dapat berubah bentuknya di lingkungan .

Sebagian besar Arsen dialam merupakan bentuk senyawa dasar yang berupa substansi anorganik. Arsen anorganik dapat larut dalam air atau berbentuk gas dan terpapar oleh manusia.

Dalam larutan, Arsen biasanya berada dalam bentuk senyawa oksianion Arsenit ( $\text{AsO}_3^{-3}$ ) dan Arsenat ( $\text{AsO}_4^{-3}$ ). Kelarutan Arsenit lebih besar dibandingkan dengan Arsenat. Oleh karena itu pada proses tailing, Arsenat lebih banyak terdapat dalam perairan.

Menurut National Institute for Occupational Safety and Health (1975), Arsen anorganik bertanggung jawab terhadap berbagai gangguan kesehatan kronis, terutama kanker. Arsen juga merusak ginjal dan bersifat racun yang sangat kuat. Komponen Arsen organik memiliki toksisitas yang lebih rendah

dibandingkan dengan komponen Arsen anorganik. Arsen dapat teroksidasi menjadi As(III) dan As(V), Toksisitas lebih As(III) berbahaya dari As(V).

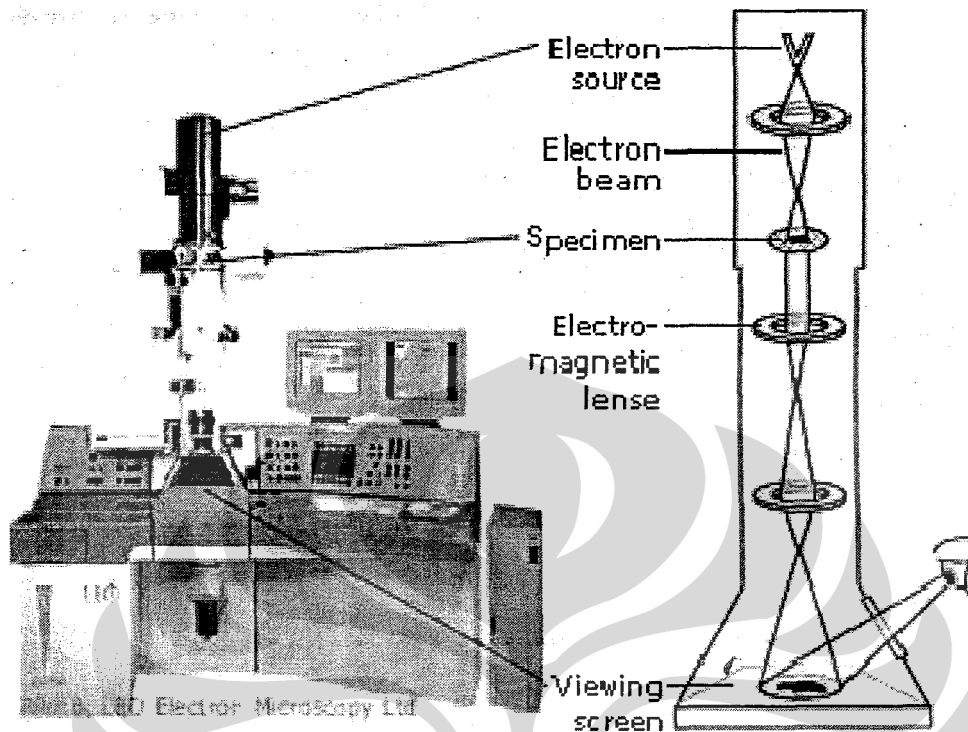
## 2.8 Instrumentasi

Instrumen yang dapat digunakan untuk mengetahui apakah zeolit terbentuk dan bagaimana morfologinya, pada penelitian ini digunakan;

### a. TEM (Thermal Electron Microscope)

TEM merupakan suatu teknik mikroskopi dengan cara menembakan elektron kelapisan tipis sampel, yang dapat memberikan informasi mengenai komposisi struktur dalam sampel. Informasi ini didapat dari analisis sifat tumbukan, pantulan maupun fase sinar elektron yang menembus lapisan tipis tersebut. Dari sifat pantulan juga dapat diketahui struktur kristal maupun arah dari struktur kristal tersebut. Lebih detail, dapat diketahui deretan struktur atom dan ada tidaknya cacat pada struktur tersebut.

Karakterisasi nanopartikel dapat dilakukan untuk mendapatkan informasi bentuk, dan ukuran dari nanopartikel yang dibuat, selain itu dapat juga digunakan untuk mengkarakterisasi sampel biologi seperti membran sel, mempelajari bagian dalam dari inti sel, virus, dan benda kecil lainnya. Berikut adalah gambar alat TEM.



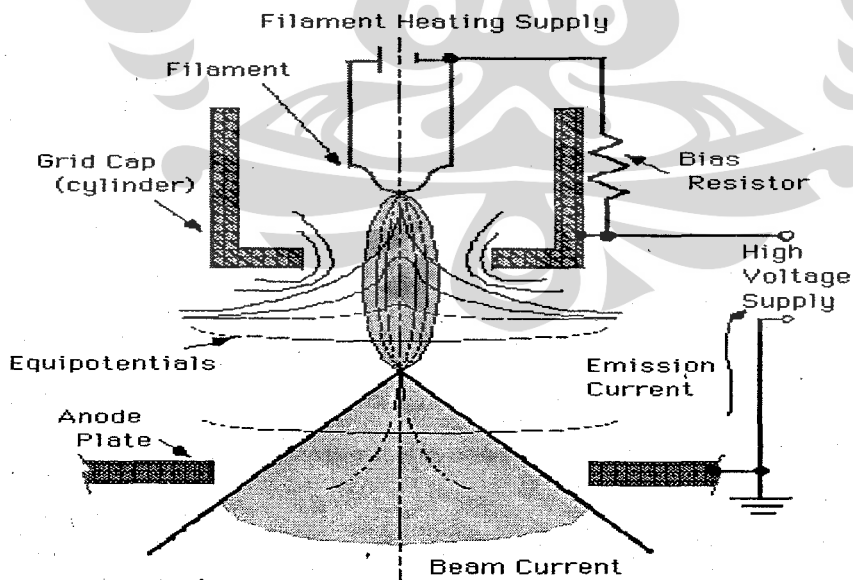
Gambar 2.8. (a) Alat Thermal Electron Microscope

#### b. SEM (Scanning Electron Microscope)

SEM merupakan salah satu instrumen yang digunakan dalam karakterisasi nanomaterial yang menerapkan prinsip difraksi elektron, memiliki prinsip kerja yang sama dengan mikroskop optik [3,4]. SEM menggunakan lensa dengan elektromagnetik yaitu medan magnet dan medan listrik yang dibuat sedemikian rupa, sehingga elektron yang melewatinya dibelokkan seperti cahaya oleh lensa elektromagnetik tersebut. Resolusi SEM mendekati beberapa nanometer dan instrumen ini dapat dioperasikan pada magnifikasi dari 10 sampai 300.000. Tidak hanya itu, SEM menyediakan informasi berupa gambar tiga dimensi yang detail dari

permukaan dan perbesaran yang cukup tinggi serta kedalaman medan yang cukup baik.

Sumber elektron pada SEM berasal dari sebuah filamen yang terbuat bermacam tipe material, umumnya Tungsten *hairpin gun*. Gulungan filamen dari tungsten berfungsi sebagai katoda, dimana adanya panas menyebabkan filamen berpijar dan menghasilkan elektron (elektron primer) dan anoda ditempatkan dibawah katoda. Aliran elektron tersebut mengenai anoda dan menuju kolom sampel. Filamen lain yang dapat digunakan adalah Lanthanum Hexaboride filamen dan *field emission gun*. Berkas elektron yang dihasilkan oleh elektron gun terletak diatas kolom, elektron yang mengenai anoda diteruskan oleh sebuah *condenser lens*, yang kemudian difokuskan pada sampel, seperti yang terlihat pada gambar dibawah ini.

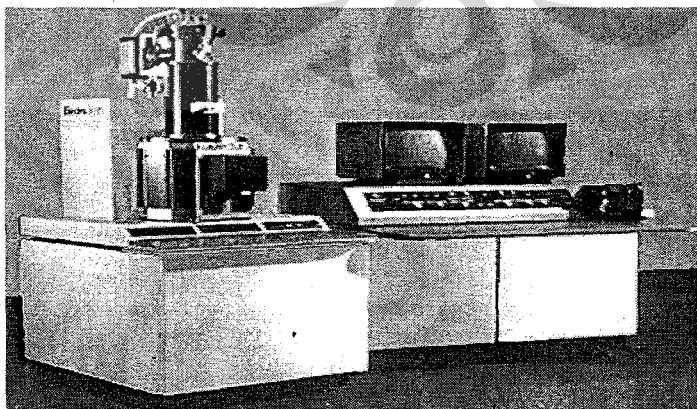


Gambar 2.8. (b) Elektron berkas tunggal



Elektron yang dihasilkan dari tembakan mengenai permukaan sampel disebut elektron sekunder, banyaknya elektron sekunder akan dirubah menjadi signal yang akan diolah menjadi hasil gambar dari permukaan sampel. Berikut adalah prinsip kerja alat SEM ;

Sampel yang telah mengalami preparasi diletakan di suatu kolom dalam mikroskop elektron dan dibuat keadaan vakum, kemudian elektron yang berasal dari elektron gun ditembakkan. Sinar elektron tersebut akan berjalan turun melewati suatu lensa magnetik dengan tujuan memfokuskan elektron pada suatu tempat yang tepat, sinar yang terfokus ini digerakkan ke seluruh permukaan sampel dengan menggunakan *deflection coil* yang akan mengenai setiap permukaan sampel, sehingga elektron sekunder yang dihasilkan pada tembakan akan terlepas dari permukaan sampel. Kemudian detektor akan menerima sekumpulan sinar elektron sekunder yang akan dirubah menjadi signal yang ditampilkan pada layar sebagai gambar permukaan. Berikut dibawah ini adalah gambar alat SEM.



Gambar 2.8. (b) Scanning Electron Microscope

c. XRF (X-ray Fluorescence)

XRF adalah suatu instrumen untuk menganalisa elemen dengan kemampuan yang unik, antara lain dapat menentukan elemen utama dengan akurasi yang tinggi dan analisis kualitatif terhadap sampel yang dilakukan tanpa menggunakan standar serta minimalnya preparasi terhadap sampel. Limit deteksi untuk mendeteksi elemen berat sekitar 10-100 ppm, sedangkan untuk elemen yang lebih ringan daripada Na sulit terdeteksi.

Prinsip kerja XRF adalah foton yang memiliki energi tinggi (X-rays) menembak elektron pada kulit dalam (biasanya K atau L) yang menyebabkan elektron tersebut berpindah ke lapisan yang paling luar. Pada saat yang bersamaan, kulit dalam terjadi kekosongan elektron yang menyebabkan keadaan tidak stabil sehingga elektron dari kulit di atasnya berpindah mengisi kekosongan dengan mengemisikan sinar (*fluorescence*), dengan energi sebesar perbedaan energi dari kedua keadaan dan panjang gelombang yang sesuai dengan karakteristik dari tiap elemen. Intensitas sinar yang diemisikan proporsional dengan konsentrasi dari tiap elemen.

## BAB III

### PERCOBAAN

Penelitian ini dibagi menjadi 2 tahap :

- Sintesis nanozeolit dan modifikasi gc-nanozeolit dengan teknik LBL dan mendispersikannya dalam larutan  $\text{Fe}^{+3}$  melalui penukaran ion,
- Kemudian elektroda *glassy carbon* yang telah dimodifikasi digunakan sebagai sensor Arsen dengan metode Voltametri Siklik.

#### 3.1 Alat dan Bahan

##### 3.1.1 Alat

- Stirer magnetik dan Stirer bar
- Botol polypropilen
- Pipet ukur
- Labu ukur
- Gelas ukur
- Gelas piala
- Bulp
- Potensiostate EDAX
- Alat Sonikasi Branson 2510

- pH meter  $\Omega$  Metrohm 744
- Timbangan analitik RADWAG, WAS 220/C/2
- TEM
- Sel elektrokimia (elektroda Pt dan elektoda Ag/AgCl)

### 3.1.2 Bahan

- Aluminiumisopropoxide,  $\text{Al}(\text{Oipro})_3$  98%, Aldrich
- Tetraethylortosilikat, TEOS  $\geq$  99%, Aldrich
- Tetramethylammonium hidroxide, TMAOH 10%, Merck
- NaOH, Merk
- Poly(diallyldimethylammonium choride) (PDDA), Aldrich
- Poly(sodium4-styrene sulfonate) (PSS), Flurochem
- Alumina slurry, Buehler
- *glassy carbon* grade gc-20SS dari Tokai Carbon, Tokyo-Japan
- KCl, Merck
- NaCl, Merck
- $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$
- HCl(pa), Merck
- $\text{H}_2\text{O}_2$
- $\text{NH}_4\text{OH}$
- Aquademin, Brata Chem

## 3.2 Cara Kerja

### 3.2.1 Sintesis Nanozeolit

Formula zeolit:

- $2.46(\text{TMA})_2\text{O}; 0.032 \text{ Na}_2\text{O}; 1\text{Al}_2\text{O}_3; 3.4\text{SiO}_2; 370\text{H}_2\text{O}$

Koloid nanozeolit dibuat dengan mereaksikan 0.2560 g NaOH, 133.1812 mL aquademin diaduk sampai larut kemudian 1.971g Al(Oipro)<sub>3</sub> ditambahkan kedalamnya dan diaduk kembali sampai homogen. Setelah larutan menjadi homogen tambahkan 0.8020 mL TMAOH dan 4.3680 mL TEOS distirer selama 3 hari pada suhu kamar. Selanjutnya koloid yang terbentuk dimurnikan dengan cara sentrifugasi dan dicuci dengan aquademin, disentrifugasi kembali dan disonikasi dengan NH<sub>4</sub>OH 0.1M selama 1 jam, disentrifugasi kembali dan dikeringkan pada suhu 80°C selama 3 jam. Nanozeolit yang terbentuk dikarakterisasi dengan TEM.

### 3.2.2 Pembuatan Larutan

- **Pembuatan Larutan HCl 0.1 M**

Sebanyak 2.5 mL HCl (37%) dimasukkan dalam labu ukur 250 mL dan diencerkan dengan aquademin sampai tanda batas.

- **Pembuatan Stok Larutan Arsen**

Larutan stok Arsen dibuat dengan melarutkan sodiummetaarsenit sebanyak 0.0129 g dalam aquademin pada labu ukur 100 mL. Dari larutan stok tersebut, kemudian dilakukan pengenceran dalam NaCl 0.1M dengan variasi konsentrasi dan variasi pH. Larutan dibuat pada konsentrasi 4, 7, 9, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80 100  $\mu\text{M}$  pada labu ukur 25 mL dengan pH 6, 7, 8, 9 dan 10.

- **Pembuatan Larutan  $\text{H}_2\text{O}_2$  0.1M**

Sebanyak 8.8235 mL  $\text{H}_2\text{O}_2$  (34 g/mol, 30%) dimasukkan kedalam labu ukur 100 mL dan diencerkan dengan aquademin sampai tanda batas.

- **Pembuatan Larutan NaCl 0.1M**

Sebanyak 0.5850 g NaCl dilarutkan dalam aquademin pada labu ukur 100 mL sampai tanda batas.

- **Pembuatan Larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1M**

Sebanyak 0.80 mL  $\text{NH}_4\text{OH}$  dimasukkan kedalam labu ukur 100 mL dan diencerkan dengan aquademin sampai tanda batas.

- **Pembuatan Larutan  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$  0.1M**

Sebanyak 2.02 g  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dilarutkan dalam aquademin dan diencerkan pada labu ukur 50 mL sampai tanda batas.

- **Pembuatan Larutan KCl 3.5 M**

Sebanyak 6.5187g KCl dilarutkan dalam aquademin dan diencerkan pada labu ukur 25 mL sampai tanda batas.

- **Pembuatan Jembatan Garam**

Sebanyak 1.75 g KCl dan 0.75 g agar-agar powder dilarutkan dalam 5 mL aquademin, kemudian dipanaskan hingga mengental. Tube elektroda pembanding dicelupkan dalam campuran tersebut hingga ketinggian  $\pm 1.5$  cm. Setelah itu diangkat, didinginkan dan disimpan dalam larutan KCl 3.5 M.

- **Pembuatan Larutan Pembersih Asam dan Basa**

Larutan pembersih asam dibuat dengan mencampurkan HCl, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, dan H<sub>2</sub>O dengan perbandingan volume 1:1:4, sedangkan larutan pembersih basa dibuat dengan mencampurkan NH<sub>4</sub>OH: H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O dengan perbandingan volume 1:1:5.

### 3.2.3 Pembuatan Pembersih Elektroda

Sebelum elektroda *glassy carbon* (gc) digunakan terlebih dahulu diampelas dengan menggunakan alumina slurry hingga mengkilap, kemudian dilakukan pembersihan lebih lanjut dengan cara disonikasi dengan larutan pembersih asam, kemudian dengan larutan pembersih basa berturut-turut selama 20 menit, dan dibilas dengan aquademin.

### 3.2.4 Pembuatan Suspensi Nanozeolit

Sebanyak 0.1000 g nanozeolit yang didapat dari hasil sintesis disuspensikan dalam 10 mL NaCl 0.1M, kemudian dilakukan pengadukan.

### 3.2.5 Modifikasi Elektroda gc dengan nanozeolit

Elektroda gc yang telah bersih dan kering, direndam dalam larutan PDDA selama 20 menit, kemudian dibilas dengan aquademin dan dikeringkan, setelah itu direndam dalam larutan PSS selama 20 menit, dibilas dengan aquademin, dan dikeringkan, dilakukan bergantian sesuai pembuatan layer yang diinginkan, sampai terbentuk layer gc/PDDA /PSS/PDDA. Sebanyak 0.1g nanozeolit disuspensikan dalam 10 mL NaCl 0.1M pH 10, kemudian gc yang telah ditreatment dengan PDDA dan PSS direndam dalam suspensi nanozeolit selama 30 menit dan dikeringkan. Setelah itu direndam dalam NaCl 0.1M pH 9.5 selama 20 menit. Variasi jumlah lapisan PDDA/PSS dibuat dengan 3 layer, 5 layer, dan 7 layer.

- **Dispersi  $\text{Fe}^{3+}$  pada Elektroda gc-nanozeolit**

Elektroda gc yang telah mengalami modifikasi diatas dilakukan pendispersian  $\text{Fe}^{3+}$  kedalam pori-pori nanozeolit dengan cara merendamnya kedalam larutan  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ , setelah itu gc dikeringkan. Variasi waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$  dilakukan selama 20, 30, 40, 50, dan 60 menit.



### 3.2.6 Pengujian gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> dengan Metode Voltametri Siklik

Untuk mengetahui keberadaan nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> sebagai sensor Arsen, maka dilakukan pengukuran dengan Voltametri Siklik, pada berbagai variasi seperti pH larutan As (III), jumlah layer, scan rate, variasi waktu perendaman Fe<sup>3+</sup>, variasi konsentrasi As (III), penentuan batas deteksi dan kestabilan elektroda.

- **Variasi pH**

Larutan Arsen 10 µM dalam 0.1M NaCl pH 6 sampai pH 10, diukur dengan Voltametri Siklik menggunakan elektroda gc yang telah dimodifikasi dengan nanozeolit dan Fe<sup>3+</sup>, untuk melihat pH pengukuran As(III) yang optimum.

- **Variasi Jumlah Layer**

Elektroda gc dengan berbagai variasi layer yang telah dimodifikasi dengan nanozeolit dan Fe<sup>3+</sup>, diaplikasikan untuk mengukur larutan As(III) 30 µM pada pH yang optimum.

- **Variasi Scan Rate**

Setelah pH optimum dan jumlah layer didapat, dilakukan variasi scan rate mulai dari 40, 50, 80 dan 100 mV/s pada larutan uji As(III) 80 µM dengan range potensial 0 sampai 1500 mV vs Ag/AgCl.

- **Variasi Waktu Perendaman Fe<sup>3+</sup>**

Waktu perendaman Fe<sup>3+</sup> dilakukan pada 20, 30, 40, 50, dan 60 menit untuk mengetahui waktu optimum Fe<sup>3+</sup> terdispersi dalam gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup>, pengukuran dilakukan pada kondisi yang optimum.

- **Variasi Konsentrasi**

Pengukuran variasi konsentrasi dilakukan pada konsentrasi As (III) 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80 dan 100µM dengan kondisi optimum yang dilakukan sebelumnya.

- **Penentuan Batas Deteksi**

Penentuan batas deteksi dilakukan dengan mengukur larutan As (III) pada konsentrasi 4, 7, 9, dan 20 µm, masing-masing pengukuran dilakukan sebanyak 3 kali pada kondisi yang sama. Tinggi arus puncak voltamogram diukur, kemudian ditentukan besarnya standar deviasi dan dibuat plot kurva arus terhadap konsentrasi dan ditentukan batas deteksinya berdasarkan  $a+3S_0$ .

- **Penentuan Kestabilan Elektroda gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup>**

Pada penentuan ini gc yang sudah dimodifikasi dilakukan pengukuran dengan As(III) secara berulang-ulang untuk mengetahui kestabilannya melalui ada atau tidaknya penurunan arus puncak, yang dilakukan pada pengukuran kondisi yang optimum.

## BAB IV

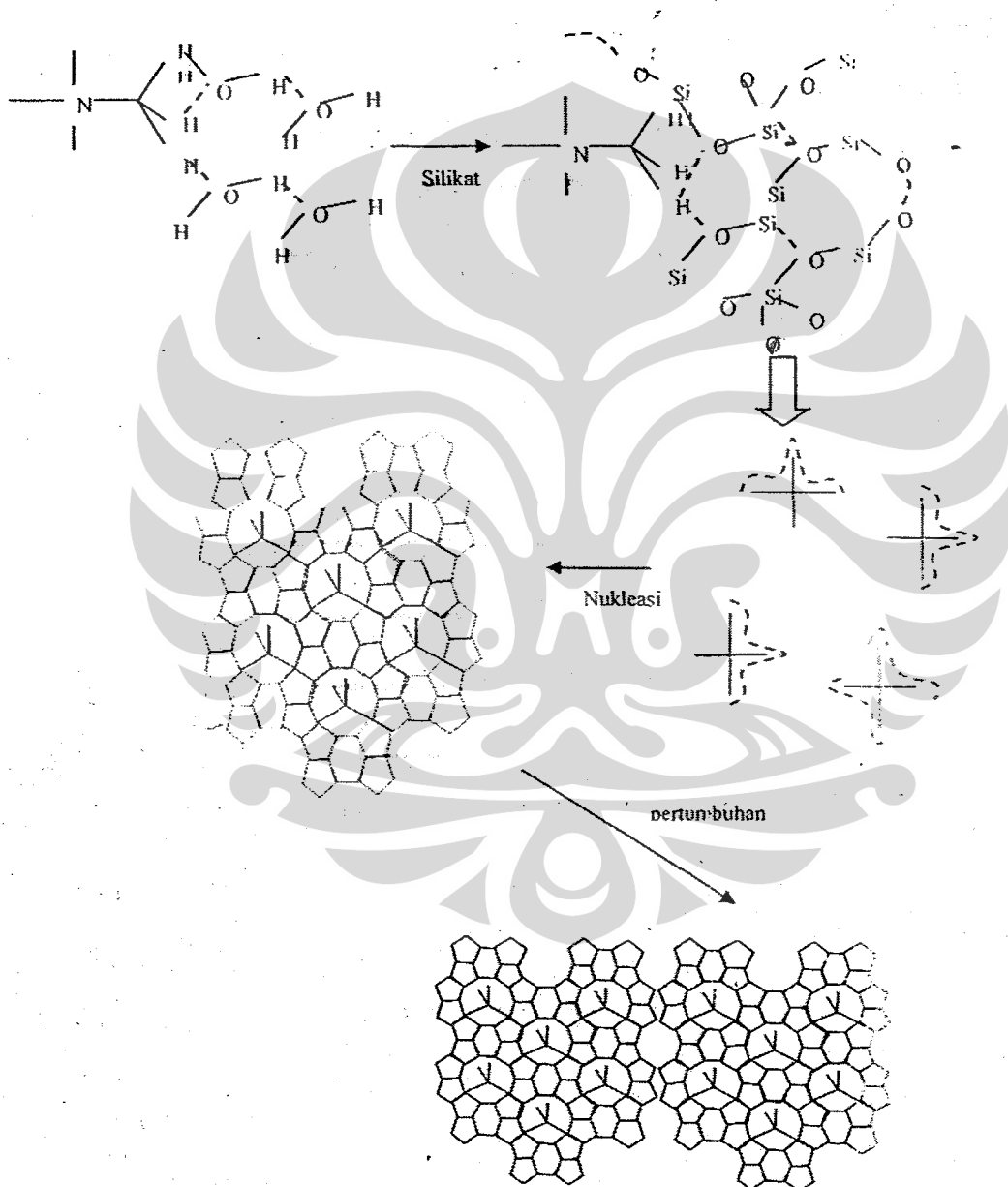
## HASIL DAN PEMBAHASAN

## 4.1 Sintesis Nanozeolit

Pada proses sintesis partikel nanozeolit pada temperatur ruang didahului dengan pembentukan sol, setelah dilakukan pengadukan dengan kecepatan medium selama 3 hari akan berkembang menjadi koloid [10]. Kondisi ini, biasanya dipengaruhi oleh adanya sejumlah kation dan *templating agent* (digunakan TMAOH) yang hadir dalam jumlah yang terbatas pada larutan, sehingga proses agregasi dari muatan negatif aluminasilikat terbatas pada level koloid. Terbatasnya proses agregasi tidak hanya disebabkan oleh adanya *templating agent* dan kation tetapi juga pemberian temperatur yang mengakibatkan proses kristalisasi berjalan sangat lambat sehingga memperkecil ukuran partikel yang dihasilkan.

Penambahan *templating agent* bertujuan agar zeolit yang terbentuk ukuran pori-porinya lebih seragam [11]. Selain itu, *templating agent* juga ikut serta didalam proses kristalisasi zeolit didalam larutan. Pada saat TMAOH (tetrametilamonium hidroksida) ditambahkan, maka ion  $\text{TMA}^+$  dan  $\text{OH}^-$  akan terbentuk dalam larutan. Ion  $\text{OH}^-$  akan meningkatkan kondisi basa pada larutan, sedangkan  $\text{TMA}^+$  akan mengadakan ikatan hidrogen dengan silikat pada ujung-ujung H dari alkilnya. Setelah tahap tersebut berlangsung, inti-inti

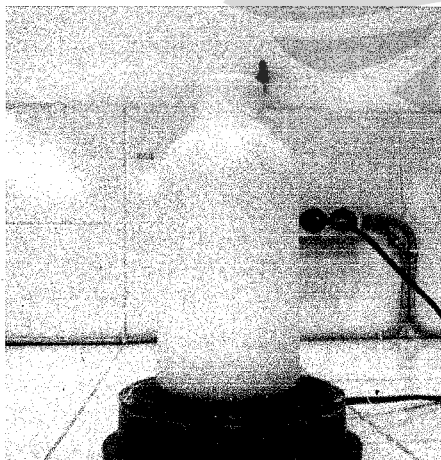
yang ada pada ujung TMA<sup>+</sup> akan mengadakan polimerisasi antara inti satu dengan inti yang lain dan saling bergabung membentuk struktur zeolit, seperti terlihat pada gambar dibawah ini.



Gambar 4.1(a) Proses pembentukan kristal Nanozeolit

Proses kristalisasi lebih lanjut akan menghasilkan *cluster-cluster* yang lebih besar. Hal ini dibuktikan, ketika sintesis partikel nanozeolit dilakukan selama 3 hari dihasilkan bentuk koloid yang keruh. Setelah dilakukan penyimpanan koloid selama 7 hari dari waktu sintesis dihasilkan endapan pada bagian bawah larutan koloid. Maka hal tersebut mengindikasikan bahwa keseluruhan proses kristalisasi terus berlangsung dan akan menghasilkan partikel yang lebih besar lagi.

Koloid yang didapat, dimurnikan dengan cara sentrifugasi dan pencucian dengan aquademin. Untuk menggantikan *template* dari rongga nanozeolit dilakukan sonikasi dengan menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1M selama 2 jam [10]. Kemudian padatan yang didapat disuspensikan dalam  $\text{NaCl}$  0.1M pH 10 dengan tujuan menjaga stabilitas muatan pada zeolit [12]. Berikut dibawah ini adalah gambar proses sintesis partikel nanozeolit dan koloid nanozeolit.



(b)

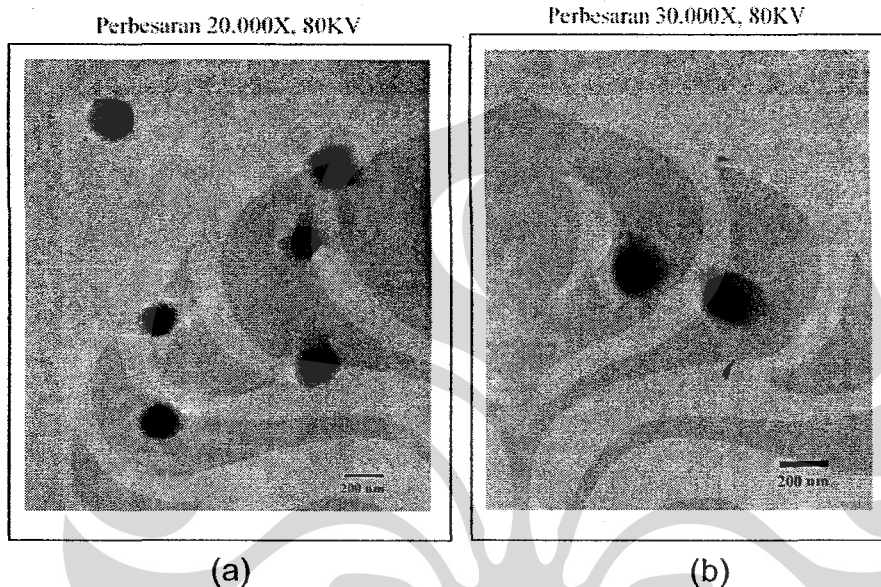


(c)

Gambar 4.1. (b) Sintesa Nanozeolit (c) Koloid nanozeolit

## 4.2 Karakterisasi Nanozeolit dengan Thermal Electron Microscope

Sampel hasil sintesis berupa koloid dikarakterisasi dengan Thermal Electron Microscope (TEM) dengan magnifikasi 80.000 V, perbesaran 20.000x dan 30.000x seperti yang terlihat pada gambar dibawah ini [13].



Gambar 4.2. (a) perbesaran 20.000x dan (b) perbesaran 30.000x

Berdasarkan gambar hasil karakteristik tersebut, diketahui ukuran partikel sebesar 180.54 nm, tidak dihasilkan ukuran yang berada dibawah 100 nm. Hal ini dikarenakan koloid nanozeolit yang dikarakterisasi dengan TEM, sudah lewat 22 hari dari waktu sintesis. Maka dapat dipastikan bahwa lamanya waktu sintesis dan waktu agging berpengaruh terhadap ukuran partikel nanozeolit yang terbentuk. Semakin lama waktu sintesis dan waktu agging akan memperbesar ukuran partikel. Selain itu, temperatur juga menjadi faktor penting dalam keberhasilan pembentukan nanopartikel.

### 4.3 Modifikasi Elektroda gc dengan Nanozeolit

Zeolit memiliki kegunaan sebagai penukar ion, selektifitas terhadap muatan, stabilitas termal yang tinggi, murah dan tahan terhadap kondisi kimia yang ekstrem, sehingga zeolit menarik untuk dijadikan katalis, adsorben, sensor dan dalam perkembangan sebagai elektroda modifikasi zeolit seperti yang dilakukan pada penelitian ini. Modifikasi elektroda dengan zeolit dilakukan teknik *layer by layer*, pengaturan ketebalan layer dan dispersi pada permukaan layer merupakan hal yang penting untuk mendapatkan kualitas elektroda yang baik [14].

Menurut Walcarius cara untuk memodifikasi elektroda dengan zeolit diklasifikasikan menjadi empat yaitu partikel zeolit didispersikan dalam matrik elektroda, zeolit dipress pada permukaan elektroda, zeolit ditempelkan dengan melapisi polimer pada elektroda, dan zeolit ditempelkan pada permukaan elektroda melalui ikatan silan [15].

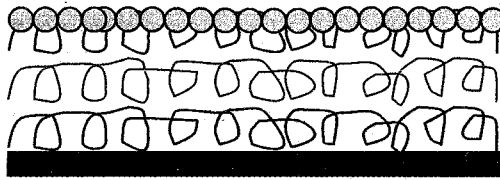
Pada penelitian ini, modifikasi elektroda dilakukan dengan cara pelapisan polielektrolit, dikarenakan memiliki reproduibilitas yang baik dan respon terhadap elektroaktifnya cepat. Sebelum dilakukan treatment pelapisan, terlebih dahulu elektroda dibersihkan dengan cara pengamplasan dengan powder alumina slury, hal ini bertujuan untuk menghilangkan pengotor yang ada pada permukaan gc dan memperhalus bidang kontak sehingga proses elektrokimia dapat berlangsung dengan baik. Selain itu pembersihan gc dengan larutan pembersih asam dan basa melalui sonikasi, bertujuan menghilangkan sisa-sisa alumina slury dan pengotor yang

terperangkap dalam pori-pori sehingga diharapkan polielektrolit akan dapat menempel dengan baik pada permukaan elektroda.

Teknik *layer by layer* dilakukan dengan merendam gc dalam larutan Poly(diallyldimethylammoniumchloride) yang merupakan polielektrolit positif, kemudian dalam larutan Poly(sodium4-styrenesulfonate) yang merupakan polielektrolit negatif [18]. Penempelan layer terjadi dikarenakan adanya interaksi elektrostatis antara polielektrolit positif dengan gc, dan polielektrolit positif dengan polielektrolit negatif. Pencucian setelah penempelan gc dengan polielektrolit bertujuan untuk menghilangkan kelebihan polielektrolit yang akan membuat permukaan elektroda menjadi tidak baik, dan pengeringan pada suhu 80°C selama 5 menit membantu dalam proses perekatan.

Layer yang terbentuk pada permukaan gc adalah gc/PDDA/PSS/PDDA/PSS/PDDA, setelah itu elektroda direndam dalam suspensi nanozeolit (nanozeolit dalam NaCl 0.1M pH 10) selama 30 menit. Adanya gugus silanol pada struktur zeolit ( $\text{O}-\text{Si}-\text{O}-\text{Al}$ ) mengakibatkan gaya tarik menarik antara partikel nanozeolit dengan polielektrolit positif menjadi lebih kuat. Berikut adalah ilustrasi modifikasi elektroda gc dengan nanozeolit melalui pembentukan layer.





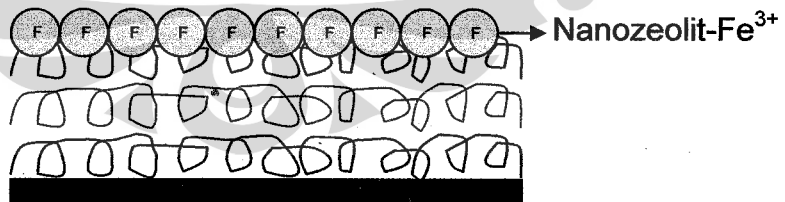
Gambar 4.3. Modifikasi gc dengan nanozeolit melalui teknik LBL

Dimana ● partikel nanozeolit



#### 4.4 Dispersi $\text{Fe}^{3+}$ dalam Elektroda gc-nanozeolit

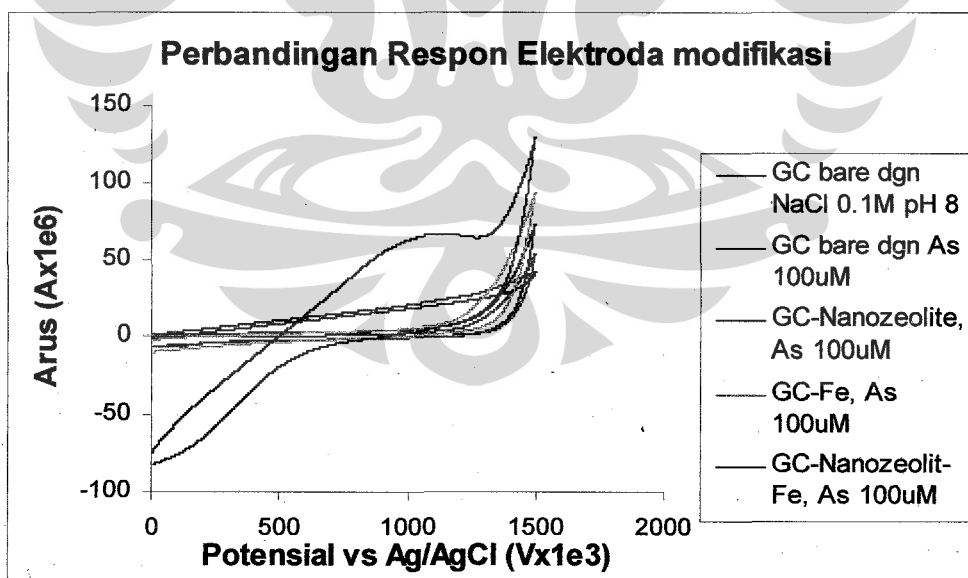
Zeolit memiliki afinitas yang rendah terhadap ion-ion Arsen, tetapi diketahui bahwa dispersi  $\text{Fe}^{3+}$  pada pori-pori nanozeolit dengan proses penukaran kation dapat meningkatkan afinitasnya dan dapat menyebabkan reaksi oksidasi antara  $\text{Fe}^{3+}$  dengan As(III) menjadi As(V). Berikut adalah ilustrasi dispersi  $\text{Fe}^{3+}$  pada elektroda gc modifikasi.



Gambar 4.4. Dispersi  $\text{Fe}^{3+}$  pada gc yang telah dimodifikasi

#### 4.5 Pengujian Elektroda gc Modifikasi nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> dengan Metode Voltametri Siklik

Untuk mengetahui adanya respon dari elektroda yang telah dimodifikasi maka dilakukan perbandingan antara elektroda gc bare, gc-nanozeolit, dan gc-Fe<sup>3+</sup> sehingga dapat dilihat perubahan respon yang terjadi. Range potensial yang digunakan pada pengukuran Voltametri Siklik berkisar antara 0-1500 mV, dipilih potensial tersebut berdasarkan penyelidikan potensial window gc bare dengan NaCl 0.1M dan percobaan pengukuran gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> dengan larutan As(III) 100  $\mu$ M dengan scan rate 80 mV/s yang memiliki puncak oksidasi sebesar 66.7  $\mu$ A pada potensial 1134 mV. Berikut adalah Voltamogram Siklik yang menyatakan respon elektroda yang telah dimodifikasi.



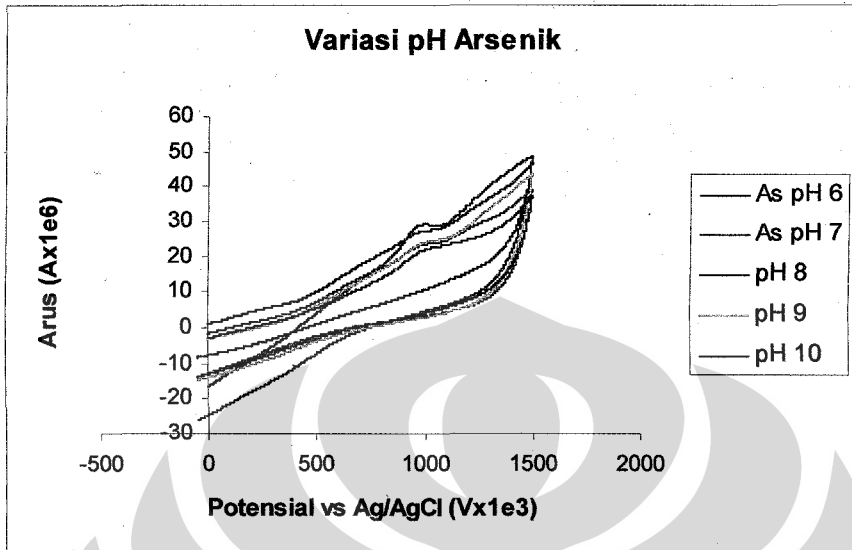
Gambar 4.5. Voltamogram Siklik respon elektroda modifikasi

Berdasarkan Voltamogram Siklik, pada gc yang diberikan treatment gc-nanozeolit, gc-Fe<sup>3+</sup> dan gc bare tidak terdapat puncak arus oksidasi, tetapi hanya terjadi kenaikan arus final mulai dari gc-nanozeolit, gc bare dan gc-Fe<sup>3+</sup>. Hal ini menyatakan bahwa bila hanya elektroda yang dimodifikasi dengan nanozeolit tanpa Fe<sup>3+</sup>, maka afinitasnya terhadap Arsen rendah dan diindikasikan gc-Fe<sup>3+</sup> dan gc bare mengalami peningkatan kuat ion, walaupun tidak terjadi interaksi pada permukaan elektroda dengan spesi elektroaktif dalam bulk larutan Arsen tersebut dan tidak dapat dijadikan sensor.

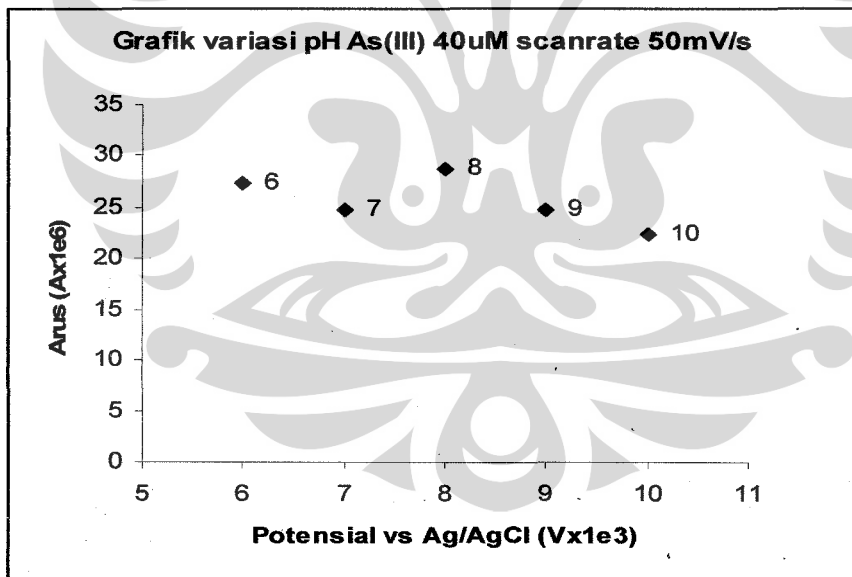
#### **4.6 Optimasi Pengukuran Voltametri Siklik**

##### **4.6.1 Variasi pH**

Pengaturan pH pada larutan Arsen yang akan diujikan penting untuk mengetahui kondisi terbaik pengukuran. Variasi pH dilakukan mulai dari pH 6, 7, 8, 9, dan 10, sedangkan pengukuran larutan Arsen pada pH yang lebih asam tidak dilakukan karena dapat merusak struktur zeolit. Pada pH 6 sampai pH 8 terjadi kenaikan puncak arus oksidasi, sedangkan pH 9 dan pH 10 terjadi penurunan puncak oksidasi, hal ini dikarenakan pada kondisi pH yang lebih basa dapat menyebabkan terbentuknya ferrihidroksida yang ada pada rongga zeolit. Akibatnya reaksi oksidasi As (III) menjadi As(V) oleh Fe<sup>3+</sup> terganggu dengan berkurangnya konsentrasi Fe<sup>3+</sup>. Berikut adalah Voltamogram Siklik untuk variasi pH larutan As(III) 40 µM.



Gambar 4.6.1 (a) Voltamogram siklik varfasi pH



Gambar 4.6.1 (b) grafik variasi pH larutan As

#### 4.6.2 Variasi Scan Rate

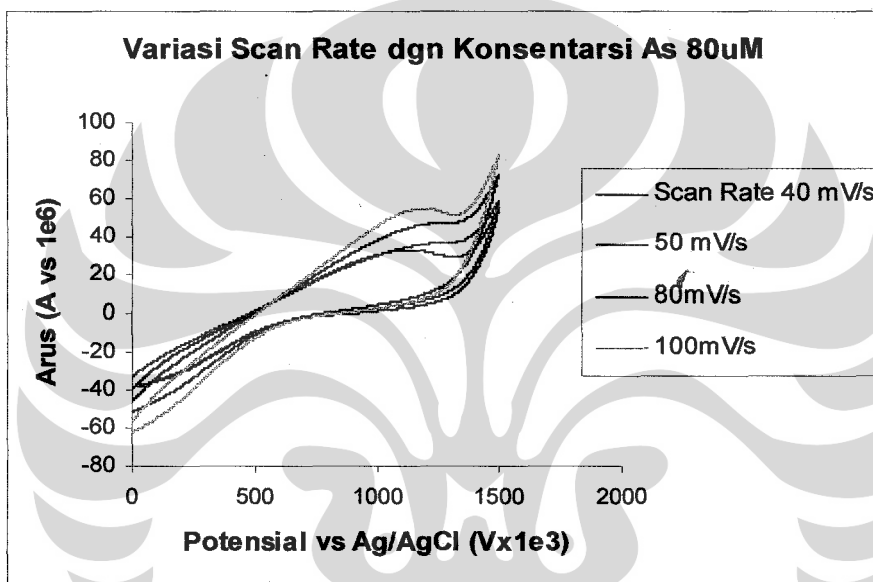
Setelah didapatkan pH optimum, selanjutnya dilakukan variasi scan rate mulai dari 40, 50, 80 dan 100 mV/s pada konsentrasi As(III) 80  $\mu\text{M}$  pH 8. Berdasarkan Voltamogram Siklik menunjukkan bahwa arus puncak oksidasi tertinggi pada konsentrasi As (III) 80 $\mu\text{M}$  scan rate 100 mV/s adalah 54.8  $\mu\text{A}$  dan arus puncak terendah pada scan rate 40 mV/s adalah 33.1 $\mu\text{A}$ .

Hal ini disebabkan besarnya scan rate yang diberikan berpengaruh terhadap ketebalan lapisan difusi [18]. Scan rate yang besar akan mengakibatkan tipisnya lapisan difusi dan flux ( $J_x$ ) yang dihasilkan akan menjadi lebih besar, sehingga arus yang dihasilkan juga menjadi besar. Sebaliknya scan rate yang kecil akan mengakibatkan tebalnya lapisan difusi dan flux ( $J_x$ ), sehingga arus yang dihasilkan menjadi lebih kecil. Berdasarkan persamaan Randles-Sevcik tingginya arus puncak sebanding dengan akar scan rate, pada penelitian ini didapat hasil yang sesuai dengan persamaan tersebut. Respon tinggi arus puncak yang dihasilkan terhadap akar scan rate adalah linear dengan persamaan regresi  $y = 5.886x - 4.6881$ ,  $R^2 = 0.9950$ . Nilai linearitas antara tinggi arus puncak dengan akar scan rate, dapat diketahui bahwa proses yang terjadi di permukaan elektroda dikontrol dominan oleh difusi.

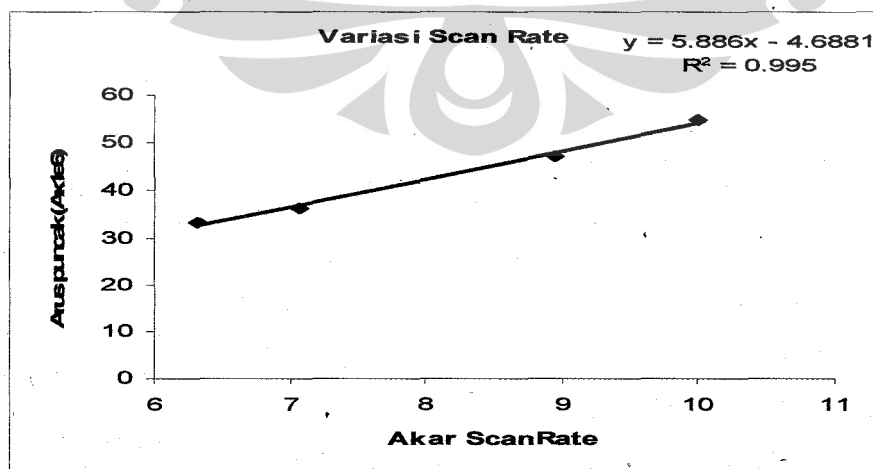
Pada penelitian ini dipilih scan rate optimum sebesar 80 mV/s, sebab bila pemberian scan rate terlalu cepat dikhawatirkan proses oksidasi berlangsung tidak sempurna. Hasil yang didapat berbeda pada penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Istiqomah. Pada penelitiannya didapat

untuk konsentrasi As (III) sebesar  $80 \mu\text{M}$ , scan rate optimum  $40 \text{ mV/s}$  dengan arus puncak sebesar  $134 \mu\text{A}$ , sebab pengambilan kondisi optimum scan rate dan range potensial berbeda.

Berikut Voltamogram Siklik dan grafik regresi linear dengan variasi akar scan rate.



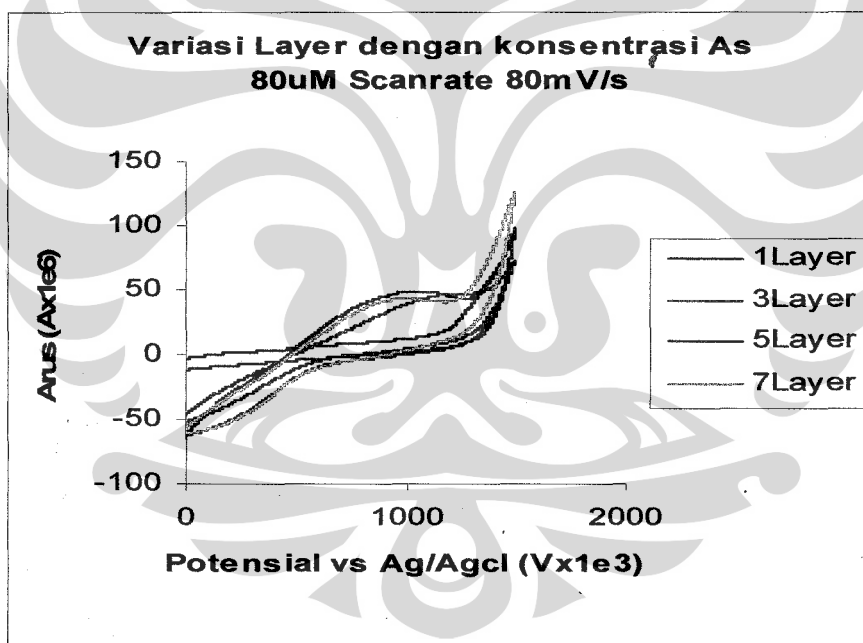
Gambar 4.6.2. (a) Voltamogram Siklik variasi Scan Rate



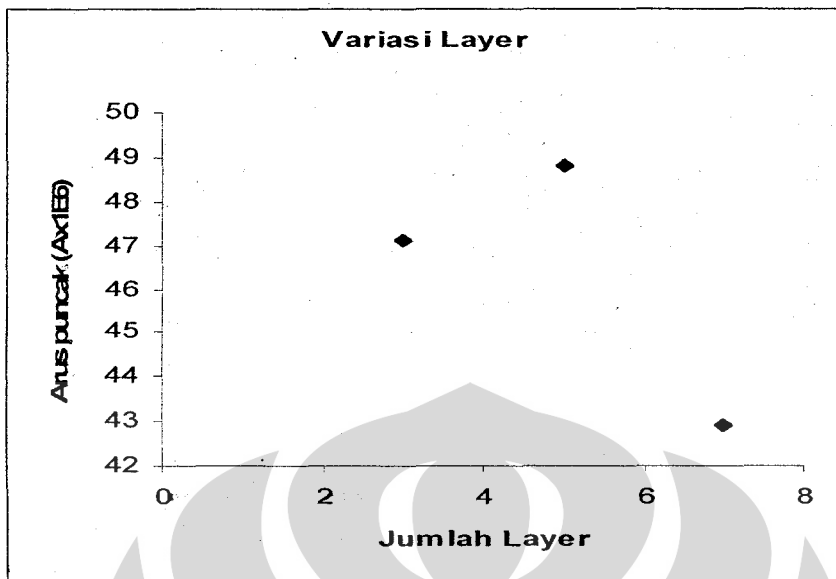
Gambar 4.6.2. (b) Grafik linearitas variasi scan rate

### 4.6.3 Variasi Jumlah Layer

Jumlah layer yang dibuat pada permukaan elektroda sangat penting dalam proses reaksi elektrokimia, hal ini dikarenakan pengaruhnya dalam proses transfer elektron antara elektroda gc (elektroda kerja) dan spesi elektroaktif dalam bulk larutan. Pada percobaan ini dilakukan variasi jumlah layer sebanyak 1layer, 3layer, 5layer dan 7layer. Berikut adalah Voltamogram Siklik dengan variasi jumlah layer.



Gambar 4.6.3. (a) Voltamogram Siklik variasi jumlah layer



Gambar 4.6.3. (b) Grafik variasi jumlah layer

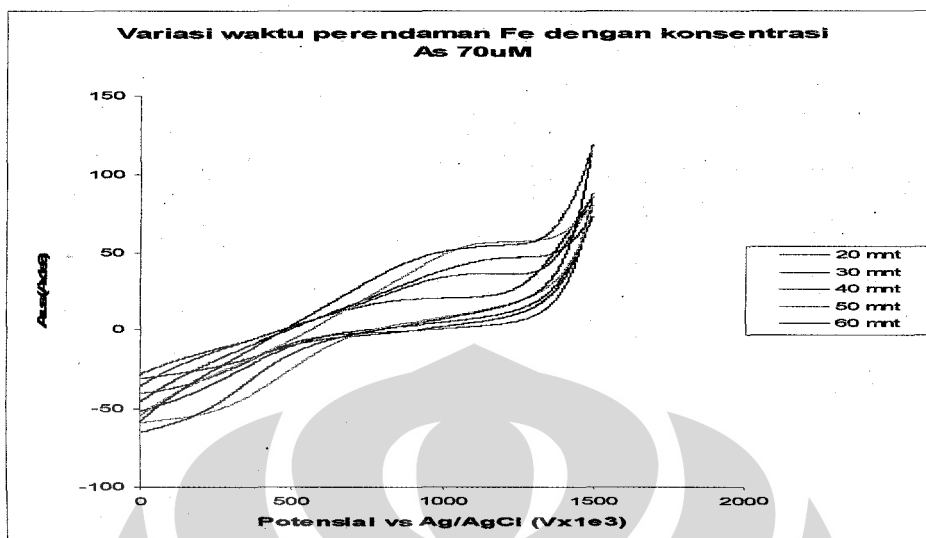
Berdasarkan gambar 4.6.3 (a) dan (b), menunjukkan bahwa arus puncak tertinggi terdapat pada 5 layer. Sedangkan pada 7 layer mengalami penurunan arus puncak, hal ini dikarenakan penggunaan jumlah layer yang terbentuk terlalu tebal sehingga menghambat proses terjadinya transfer elektron dari elektroaktif kepada permukaan elektroda. Sebaliknya bila layer yang digunakan terlalu tipis, penempelan dengan nanozeolit menjadi kurang sempurna, oleh karena itu dipilih jumlah layer yang menghasilkan pengukuran data paling optimum yaitu 5 layer.



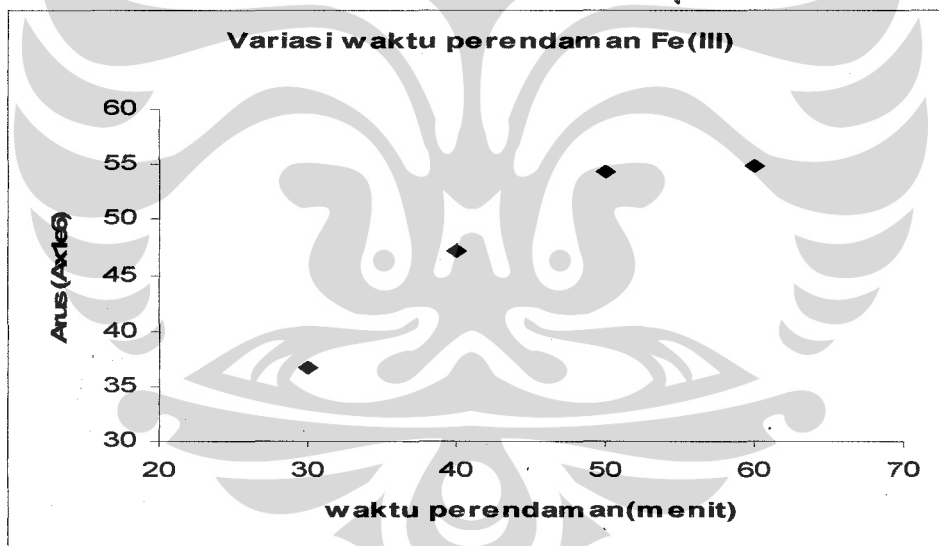
#### 4.6.4 Variasi Waktu Perendaman $\text{Fe}^{3+}$

Modifikasi gc-nanozeolite dengan  $\text{Fe}^{3+}$  dilakukan merendam elektroda tersebut dalam larutan  $\text{Fe}^{3+}$  selama beberapa menit, dispersi dapat terjadi karena berlangsungnya proses pertukaran kation pada rongga nanozeolit dengan  $\text{Fe}^{3+}$ . Banyaknya  $\text{Fe}^{3+}$  yang tertukarkan pada rongga nanozeolit tentunya akan meningkatkan kualitas pendeteksian Arsen pada permukaan elektroda yang dapat diketahui melalui tinggi arus puncak, semakin banyak  $\text{Fe}^{3+}$  mengisi rongga nanozeolit maka semakin banyak pula ion Arsen yang dapat berinteraksi dengan  $\text{Fe}^{3+}$ . Oleh karena itu pada penelitian ini dilakukan variasi waktu perendaman larutan  $\text{Fe}^{3+}$  untuk mengetahui banyaknya  $\text{Fe}^{3+}$  dapat mengisi rongga nanozeolit agar hasil yang diberikan optimum.

Pada penelitian ini, variasi waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$  dilakukan selama 20 menit, 30 menit, 40 menit, 50 menit, dan 60 menit. Berdasarkan voltamogram dan grafik linearitas, waktu optimum untuk perendaman  $\text{Fe}^{3+}$  dilakukan selama 40 menit dengan nilai arus puncak sebesar  $47.1 \mu\text{A}$  menggunakan konsentrasi As(III) sebesar  $70 \mu\text{M}$ . Berikut Voltamogram Siklik variasi waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$ .



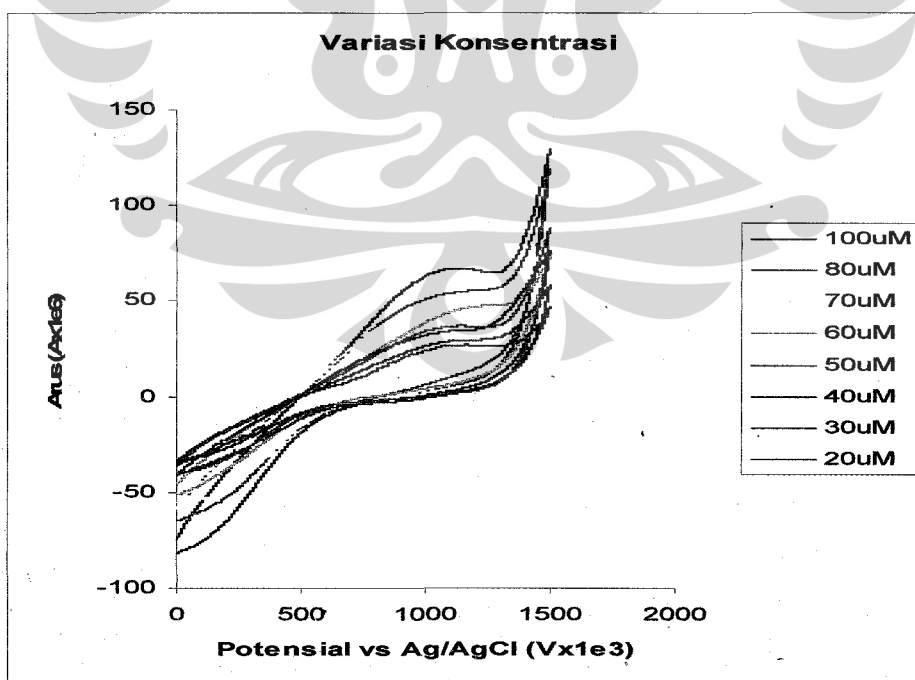
Gambar 4.6.4 (a) Voltamogram Siklik variasi waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$



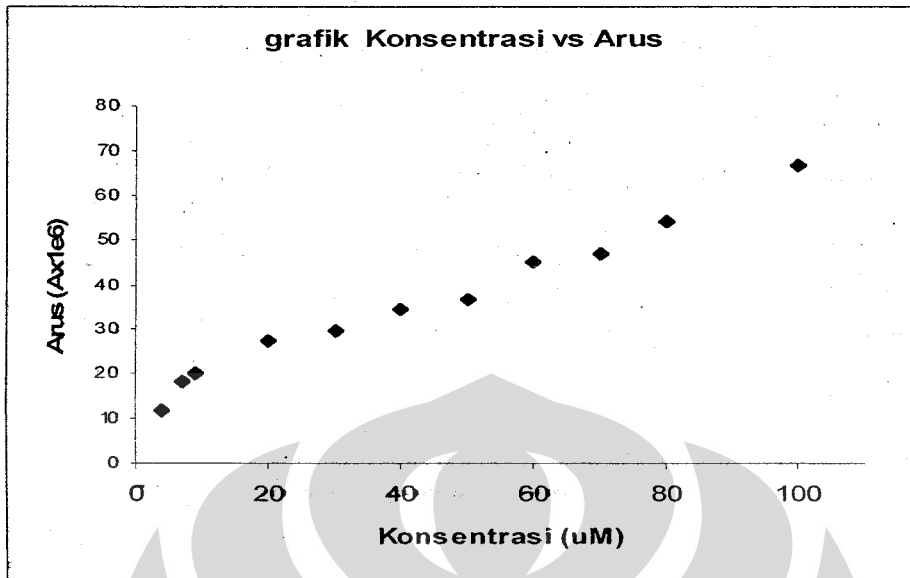
Gambar 4.6.4 (b) Grafik variasi waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$

#### 4.6.5 Variasi Konsentrasi

Konsentrasi As(III) yang digunakan pada variasi konsentrasi sebesar 4, 7, 9, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80 dan 100  $\mu\text{M}$  dengan scan rate 80 mV/s. Berdasarkan voltamogram dapat dilihat bahwa pada peningkatan konsentrasi As (III) terjadi kenaikan arus puncak. Hal ini dikarenakan dengan bertambahnya konsentrasi As (III) dalam bulk larutan maka akan meningkatkan reaksi oksidasi antara nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  pada permukaan elektroda, diketahui melalui nilai arus puncak seperti yang dijelaskan dalam persamaan Randles-Sevcik bahwa arus puncak sebanding dengan konsentrasi, akar scan rate dan luas elektroda kerja. Berikut adalah voltamogram dan grafik linearitas berdasarkan variasi konsentrasi As (III).



Gambar 4.6.5. (a) Voltamogram Siklik variasi konsentrasi



Gambar 4.6.5. (b) Grafik linearitas variasi konsentrasi

#### 4.6.6 Penentuan Batas Deteksi Elektroda gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup>

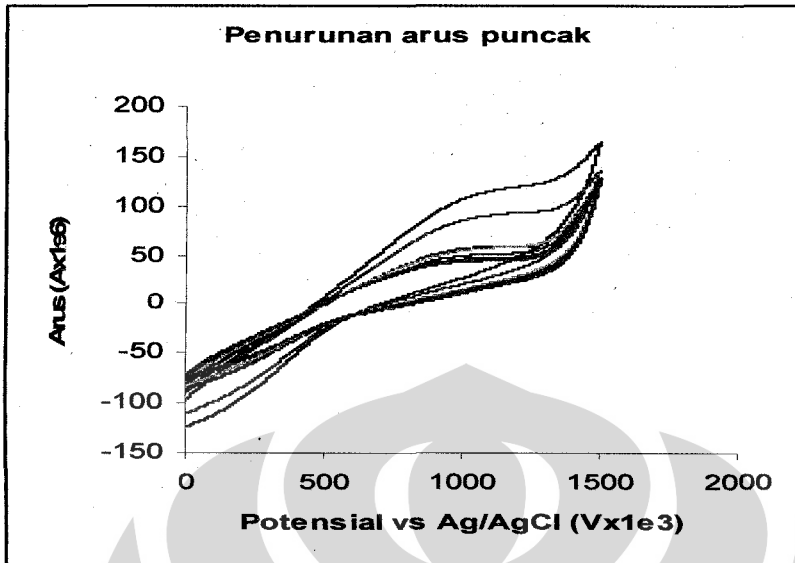
Batas deteksi atau LOD (limit of detection) ditentukan dengan mengetahui kadar minimal Arsen yang dapat terdeteksi oleh elektroda gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup>. Penentuannya dilakukan terhadap konsentrasi Arsen yang memberikan respon arus paling linear. Pengukuran dilakukan sebanyak 3 kali pengukuran pada kisaran potensial 0 sampai 1500 mV, scan rate 80 mV/s, jumlah layer sebanyak 5 layer dan waktu perendaman Fe<sup>3+</sup> selama 40 menit.

Nilai LOD ditentukan dari nilai respon arus rata-rata pada pengukuran sebanyak 3 kali. Berdasarkan perhitungan seperti yang terdapat dalam lampiran 2, nilai LOD yang didapat pada penelitian ini sebesar 0.02313 µM setara dengan 1.7329 ppb. Hal ini menyatakan bahwa konsentrasi Arsen terendah yang dapat dideteksi oleh elektroda gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> sebesar

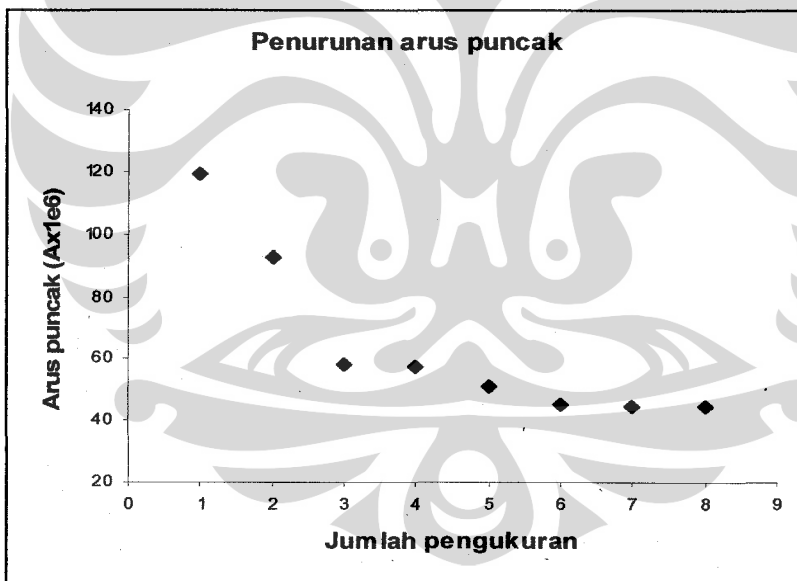
1.7329 ppb, sedangkan kadar Arsen yang diperbolehkan dalam air minum adalah 2-20 ppb. Dengan demikian, elektroda gc-nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  dapat digunakan untuk mendeteksi kontaminasi Arsen dalam air minum.

#### 4.6.7 Pengujian Kestabilan

Pengujian kestabilan elektroda gc yang telah dimodifikasi dilakukan dengan cara melihat penurunan arus puncak setelah dilakukan pengukuran beberapa kali. Pengukuran dilakukan pada potensial 0-1500 mV scan rate 80 mV/s, penurunan arus puncak terjadi setiap kali dilakukan penyapuan potensial. Hal ini dikarenakan reaksi oksidasi yang berlangsung pada permukaan elektroda antara  $\text{Fe}^{3+}$  dengan Arsen adalah reaksi ireversibel, dimana pemberian sapuan balik tidak dapat menyebabkan terbentuknya  $\text{Fe}^{3+}$  kembali, sehingga semakin lama  $\text{Fe}^{3+}$  pada rongga nanozeolit jenuh dan tidak dapat berinteraksi dengan As(III) lebih lanjut.



Gambar 4.6.7 (a) Voltamogram penurunan arus puncak



Gambar 4.6.7 (b) Grafik penurunan arus puncak

## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1 Kesimpulan

Sintesis partikel nanozeolit dilakukan pada temperatur kamar bertujuan untuk mengurangi kecepatan proses kristalisasi yang mengakibatkan ukuran partikel yang dihasilkan menjadi lebih kecil.

Modifikasi elektroda gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> dilakukan dengan teknik *layer by layer*, pengaturan ketebalan layer dan dispersi pada permukaan layer merupakan hal yang penting untuk mendapatkan kualitas elektroda yang baik. Dipilih cara tersebut dikarenakan elektroda akan memiliki reproduibilitas yang baik dan respon terhadap elektroaktifnya cepat.

Pada pengukuran dengan Voltametri Siklik dilakukan beberapa variasi diantaranya: variasi pH larutan Arsen, scan rate, jumlah layer, waktu perendaman larutan Fe<sup>3+</sup>, konsentrasi larutan Arsen, dan kestabilan elektroda yang telah dimodifikasi. Range potensial yang digunakan pada pengukuran Voltametri Siklik berkisar antara 0-1500 mV, dipilih potensial tersebut berdasarkan penyelidikan potensial window gc bare dengan NaCl 0.1M dan percobaan pengukuran gc-nanozeolit-Fe<sup>3+</sup> dengan larutan As (III) 100 µM dengan scan rate 80 mV/s yang memiliki puncak oksidasi sebesar 66.7µA pada potensial 1134 mV.

Berdasarkan Voltamogram Siklik menunjukkan bahwa pH optimum untuk pengukuran As (III) dilakukan pada pH 10, variasi jumlah layer optimum pada 5 layer, scan rate digunakan pada scan rate 80 mV/s karena kenaikannya yang cukup signifikan, waktu perendaman  $\text{Fe}^{3+}$  selama 40 menit dan elektroda gc-nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  setelah dilakukan pengukuran selama 8 kali terjadi penurunan arus puncak dikarenakan reaksi oksidasi yang berlangsung pada permukaan elektroda antara  $\text{Fe}^{3+}$  dengan Arsen adalah reaksi ireversibel, dimana pemberian sapuan balik tidak dapat menyebabkan terbentuknya  $\text{Fe}^{3+}$  kembali, sehingga semakin lama  $\text{Fe}^{3+}$  pada elektroda gc jenuh dan tidak dapat berinteraksi dengan As (III) lebih lanjut.

Dengan bertambahnya konsentrasi As (III) dalam bulk larutan maka akan meningkatkan reaksi oksidasi nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  dengan As (III) pada permukaan elektroda, diketahui melalui nilai arus puncak seperti yang dijelaskan dalam persamaan Randles-Sevcik bahwa arus puncak sebanding dengan konsentrasi, akar scan rate dan luas elektroda kerja.

## 5.2 Saran

Modifikasi elektroda gc-nanozeolit- $\text{Fe}^{3+}$  masih perlu dikembangkan lagi untuk mencari kondisi yang lebih optimum agar didapat elektroda yang memiliki kestabilan yang baik. Selain itu perlunya diketahui selektifitasnya bila dalam larutan yang akan dianalisis mengandung ion logam lain.

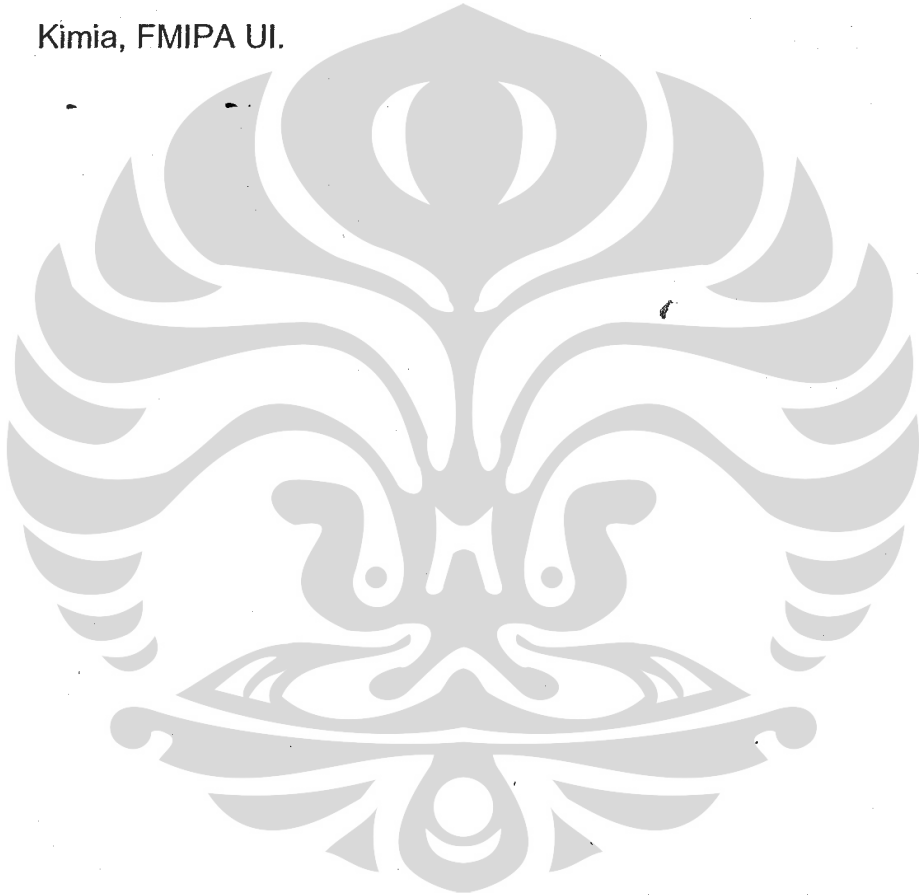


## DAFTAR PUSTAKA

1. Tsitsishvili, G. V and T. G. Andronikashvili. 1992. Natural Zeolites.  
England: Ellish Horwood.
2. Rahayu, Susi. 2003. Studi Pembuatan Zeolit ZSM-5 Menggunakan Zat  
pengarah 1,2-diaminoetana dan Uji Daya Katalitiknya. Karya  
Utama Sarjana Kimia. Departemen Kimia. FMIPA UI.
3. Cao, Guozhong. 2004. Nanostructure & Nanomaterial. Singapore:  
Imperial collegepress.
4. Yulizar, Yoki. 2004. KSK Fisik IV: Kimia Nanopartikel Logam.  
Departemen Kimia. FMIPA UI.
5. Yulizar, Yoki. 2005. KSK Fisik I : Teknik pengukuran spesies  
permukaan. Departemen Kimia. FMIPA UI.
6. Tosheva, Lubomira and Valentin P. Valtchev. Nanozeolites: Synthesis,  
Crystallization Mechanisme, and Application. Chem. Matter.  
2005, 17, 2494-2513.
7. Wibowo, Rahmat. 2004. Analisis Elektrokimia. Departemen Kimia,  
FMIPA UI.
8. Wang, Joseph. 2000. Analytical Electrochemistry. Second edition.  
United States of America: John Willey & Sons, inc., Publication.

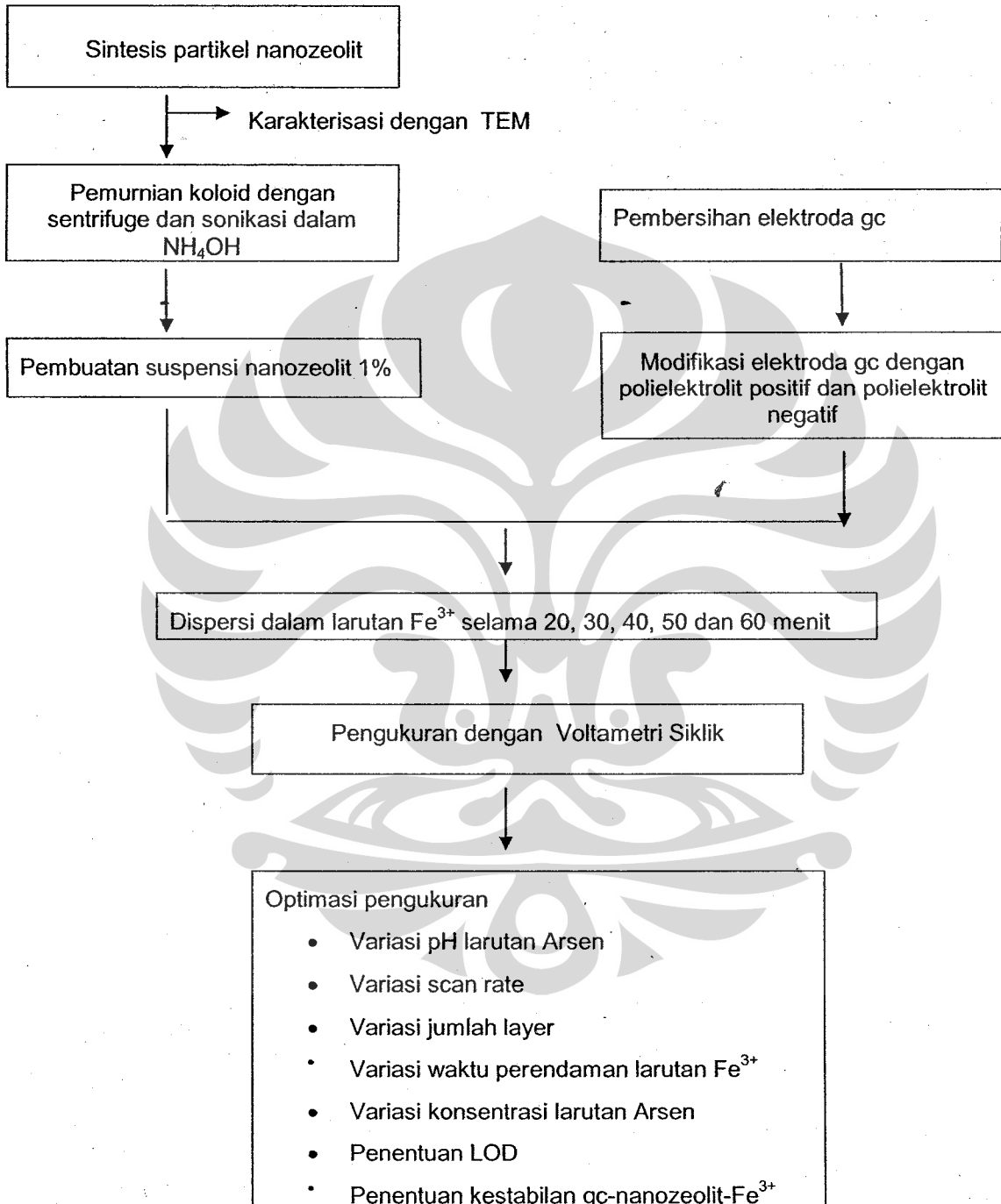
9. Tosheva, Lubomira dan Valentin P. Valtchev. Nanozeolites: Synthesis, Crystallization Mechanisme, and Application. Chem. Matter. 2005, 17, 2494-2513.
10. Valtchev, P. Valentin, et. al. Synthesis of Zeolite Nanocrystal at Temperature Room. Langmuir, 2005, 10724-10729.
11. Egeblad, Kresten, et.al. Templating Messoporous Zeolites. Chem. Mater. 2008, 20, 946-960.
12. Zhou, Xiaoqin., et. Al .Nanozeolite-assembled Interface towards Sensitive Biosensing. Elsevier. 2007, 1526.
13. Valtchev, P. Valentin, et. al. Transmission Electron Microscopy Study of Formation of FAU-Type Zeolite at Room Temperature. J. Phys. Chem. B2004, 1008, 15587-15598.
14. Yang, Wuli, et.al. Layer by Layer Assembly of Nanozeolite Based on Polymeric Microsphere: Zeolite Coated Sphere and Hollow Zeolite Sphere. J. Macromol. Sci-Pure Appl. Chem., A39(6), 2002, 509-526
15. Zhang, Yahong., et al. Fabrication of Ultrathin Nanozeolite Modified Electrodes and their Electrochemical Behavior. Microporous and Mesoporous Materials 65 (2003) 277-285.
16. Wijaya, Lani. 2008. Modifikasi Elektroda Karbon dengan Nanopartikel Emas dan Aplikasinya sebagai Sensor Arsen(III). Karya Utama Srjana Kimia. Departemen Kimia. FMIPA UI.

17. Wang, X.D., et. al. Fabrication of Hollow Zeolite Spheres. The Royal Society of Chemistry, 2000, 2161.
18. Aurelia, Inezia. 2005. Studi Modifikasi Glassy Carbon dengan Teknik Elektrodeposisi Iridium Oksida untuk Aplikasinya sebagai Sensor Arsen(III). Karya Utama Sarjana Kimia. Departemen Kimia, FMIPA UI.





## Lampiran 1. Skema kerja penelitian



**Lampiran 2. Data tinggi arus penentuan kurva kalibrasi linier dan penentuan batas deteksi (LOD)**

**a. Data tinggi arus puncak oksidasi terhadap variasi konsentrasi**

Konsentrasi	Arus 1	Arus 2	Arus 3	Arus rata-rata	Standar deviasi
0	7.32	7.20	7.20	7.24	0.0115
4	12.1	11.5	11.3	11.6	0.4163
7	18.9	17.9	17.9	18.2	0.5773
9	20.3	20.1	19.6	20.0	0.3605
20	27.3	26.9	26.8	27.0	0.2645
30	29.8	29.2	28.9	29.3	0.4582
40	34.5	34.2	34.5	34.4	0.1732
50	37.0	36.9	36.2	36.7	0.4358
60	46.1	44.5	44.7	45.1	0.8717
70	47.1	47.8	46.4	47.1	0.7000
80	56.3	54.0	52.9	54.4	1.7349
100	66.7	66.9	66.8	66.7	0.2645

b. Penentuan batas deteksi (LOD)

Daerah linieritas respon arus terhadap konsentrasi As (III)

Konsentrasi ( $\mu\text{M}$ )	Arus rata-rata( $\mu\text{A}$ )
0	7.24
4	11.6
7	18.2
9	20

Linieritas respon arus diplot terhadap konsentrasi As (III), maka didapatkan persamaan garis;

$$Y = 1.4913X + 6.8034$$

Batas deteksi/limit deteksi (LOD) ditentukan dengan;

$$\text{LOD} = a + 3S_0$$

Dimana  $S_0$  adalah standar deviasi untuk larutan uji tanpa As (III)

$$\text{LOD} = 6.8034 + 3(0.0115)$$


$$= 6.8379$$

Nilai LOD yang didapat sebesar 6.8379, kemudian disubsitusikan pada persamaan regresi linier diatas.

$$Y = 1.4913X + 6.8034$$

Maka didapat nilai LOD sebesar 0.0231  $\mu\text{M}$  setara dengan 1.7329 ppb.

### Lampiran 3. Daftar Singkatan



TMAOH	Tetramethylammonium hydroxide
TEOS	Tetraethylortosilicate
Al(Oipro) <sub>3</sub>	Aluminiumisopropoxide
PDDA	poly(diallyldimethylammoniumchloride)
PSS	poly(sodium-4-styrenesulfonate)
gc	glassy carbon
LBL	layer by layer
XRF	X-ray Flourecence
TEM	Thermal Electron Microscope
SEM	Scanning Electron Microscope
STM	Scanning Tunneling Microscope
AFM	Atomic Force Microscope
SAXS	Small Angel X-ray Scattering
FTIR	Fourier Transform Infrared spectroscopy
LSV	Linear Sweep Voltametry
CV	Cyclic Voltametry
As(III)	Arsen dengan tingkat oksidasi 3+
As(V)	Arsen dengan tingkat oksidasi 5+