

Sintesis dan karakterisasi zeolite LTA dari *coal bottom ash* teraktivasi dengan *aging system*

Simparmin Br. Ginting^{1,*}, Reni Rukma Winarti¹, Tiara Andini¹, Herry Wardono², Muhammad Hanif¹, Darmansyah¹

¹Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Lampung, Bandar Lampung, Lampung, 35141

²Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Lampung, Bandar Lampung, Lampung, 35141

*Email: simparmin.ginting@eng.unila.ac.id

Abstrak

Telah dilakukan sintesis Zeolit LTA (Linde Type-A) dari *Coal Bottom Ash* (CBA) terkalsinasi dengan metode *step change temperature*. Pada penelitian ini dikaji pengaruh waktu aging dan uji kinerja Zeolit LTA pada proses dehidrasi adsorptif etanol air agar diperoleh bioetanol yang sesuai dengan FGE (*Fuel Grade Ethanol*). *Coal Bottom Ash* (CBA) dikalsinasi pada suhu 500°C kemudian ditambahkan dengan Al₂O₃ dan NaOH untuk membentuk larutan silika alumina serta diaging dengan variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam. Larutan silika alumina disintesis menggunakan media botol polipropilen kemudian dianalisis menggunakan XRD (*X-Ray Diffraction*), SEM (*Scanning Electron Microscopy*), FTIR (*Fourier Transmission Infrared*), dan BET (*Brunauer, Emmet And Teller*). Berdasarkan analisis XRD diperoleh persen kristalinitas relatif tertinggi 43,88%, hasil analisis FTIR menunjukkan ciri khas zeolit LTA pada bilangan gelombang 550-600 cm⁻¹, hasil analisis SEM menunjukkan pola morfologi standar berbentuk kubus, dan hasil analisis BET didapatkan loop histeris tipe III. Dari hasil uji performa Zeolit LTA pada etanol air diperoleh kadar penjerapan air akhir sebesar 76,84%.

Kata kunci: Bioetanol, *Fuel Grade Ethanol*, Metode *Step Change Temperature*, waktu *aging*, Zeolit LTA

1. Pendahuluan

Bioetanol adalah etanol yang dihasilkan dari fermentasi glukosa (gula) menggunakan bantuan ragi/*yeast* terutama jenis *Saccharomyces cerevisiae*. Umumnya kadar bioetanol dari proses fermentasi masih rendah yaitu 10%. Jika bioetanol ingin digunakan sebagai bahan bakar (*biofuel*), maka konsentrasi ini perlu ditingkatkan hingga 99,5% sebagai persyaratan *fuel grade ethanol*

(FGE). Salah satu cara untuk meningkatkan kadar bioethanol adalah dengan proses dehidrasi untuk memperoleh etanol dengan kadar lebih besar dari 99% [Onuki,2012]. Selain proses distilasi, metode pervaporasi dapat digunakan sebagai proses dehidrasi. Metode pervaporasi dilakukan dengan cara memanaskan larutan campuran pada temperatur yang sesuai dengan sifat stabilitas membran dan materi yang ingin dipisahkan dalam sistem hingga komposisi

campuran telah jenuh. Campuran yang telah jenuh dialirkan menuju membran sehingga diperoleh permeat dan cairan induk [Rangkuti,2016]. *Molecular sieves* memiliki ukuran pori yang seragam, permukaan area yang luas, kemampuan mengontrol densitas sisi aktif kapasitas adsorpsi yang paling tinggi sehingga paling sering diaplikasikan pada proses pemisahan azeotrop etanol-air [Sowerby dan Crittenden,1998]. Rasio Si/Al pada *molecular sieves* menentukan efek hidrofobik/hidrofilik dan performa dehidrasi. Membran LTA (Linde Type-A) memiliki aplikasi yang sangat besar pada dehidrasi etanol-air dikarenakan bersifat hidrofilik dan kandungan alumina yang tinggi [Sharma,2015]. Salah satu jenis adsorben yang sering digunakan adalah zeolit karena memiliki ukuran pori yang memadai sebagai adsorben. Pada industri sendiri sering digunakan zeolit sintesis, karena zeolit sintesis memiliki kemurnian dan kristalinitas yang lebih tinggi dibandingkan zeolit alam.

Pada penelitian yang sudah dilakukan oleh Carlos dkk (2010) menunjukkan bahwa material yang tidak diberikan perlakuan awal sebelum disintesis akan mengakibatkan material tersebut sulit untuk bereaksi ketika ditambahkan asam atau alkali. Maka dari itu perlu dilakukan perlakuan khusus yaitu dikalsinasi dengan temperatur yang tepat agar material menjadi lebih reaktif.

Selain itu, menurut Janjira, 2002 perlakuan kalsinasi pada tahap preparasi bahan baku akan menjadikan bahan baku tersebut bersifat amorf, yang mana jika fasa bahan baku semakin amorf maka akan menjadikan bahan baku tersebut lebih mudah membentuk kristal baru yang diinginkan.

Telah dilakukan beberapa penelitian mengenai sintesis zeolit LTA. Seperti penelitian yang dilakukan oleh Mirfendereski dan Mohammad (2016) tentang efek parameter sintesis pada karakteristik zeolit nanopartikel tipe NaA. Dilakukan variasi komposisi gel Al_2O_3 : SiO_2 : Na_2O : H_2O , temperatur, waktu sintesis, dan waktu *aging* konstan. Penelitian ini menghasilkan zeolit LTA terbaik dengan komposisi gel (Al_2O_3 : $1,92\text{SiO}_2$: $3,16\text{Na}_2\text{O}$: $128\text{H}_2\text{O}$), temperatur sintesis 100°C , waktu sintesis 3 jam, dan waktu *aging* 3 jam dengan persen kristalinitas produk sebesar 100%. Penelitian lain tentang *effek step change of temperature synthesis* pada sintesis zeolit 4A dari abu layang batu bara dilakukan oleh Hui dan Chao (2005). Variabel yang dipelajari dalam penelitian ini adalah temperatur sintesis pertama (T1) selama 1,5 jam kemudian diberikan perlakuan *step change* ke temperatur sintesis kedua (T2) selama 0,5-8 jam. Penelitian ini menghasilkan zeolit LTA terbaik dengan kristalinitas sebesar 75% pada variabel T1 = 90°C dan T2 = 95°C . Alfaro dkk (2007) melakukan penelitian tentang efek waktu *aging* pada sintesis zeolit LTA tanpa

menggunakan *template* organik, variabel yang dipelajari dalam penelitian ini adalah waktu *aging* yang menghasilkan zeolit LTA dengan intensitas puncak paling tajam pada waktu *aging* selama 144 jam. Palcic dkk (2012) juga pernah melakukan penelitian sintesis zeolit A dibawah kondisi dinamis setelah pematangan *hydrogel*. Variabel yang dipelajari dalam penelitian ini adalah waktu *aging*. Penelitian ini menghasilkan zeolit LTA pada waktu *aging* selama 209 jam dengan kristalinitas sebesar 4,5%.

Paper ini akan mengkaji tentang sintesis zeolite LTA dari *coal bottom ash* terkalsinasi, yang dilakukan *aging* terhadap larutan silika-alumina pada beragam waktu. Selanjutnya dilakukan uji kinerja dari adsorben zeolite LTA hasil sintesis sebagai media adsorben dalam proses dehidrasi etanol-air untuk memperoleh kemurnian etanol hingga lebih dari 99,95%.

2. Metodologi

Pada penelitian ini, dilakukan sintesis Zeolit LTA dari *coal bottom ash* (CBA) terkalsinasi dengan variasi waktu *aging* 0, 12,24, dan 36 jam dengan komposisi molar larutan silika alumina: (1,9SiO₂ : Al₂O₃ : 3,16Na₂O : 128H₂O) [Mirfendereski dan Mohammadi,2016].

1) *Pretreatment coal bottom ash* (CBA)
CBA sebanyak 5,864 gram dihaluskan dengan menggunakan mortar, kemudian

diayak menggunakan ukuran pengayak 200 mesh dan dikalsinasi pada suhu 500°C selama 1 jam.

- 2) Pembuatan Larutan NaOH
5 gram NaOH dilarutkan kedalam 91,242 mL Aquades, kemudian larutan dibagi menjadi dua bagian dengan volume yang sama.
- 3) Pembuatan Larutan Sodium Aluminat
Sebanyak 3,0695 gram Al₂O₃ dilarutkan kedalam satu bagian larutan NaOH. Kemudian larutan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu 60°C selama 1 jam.
- 4) Pembuatan Larutan Sodium Silikat
Sebanyak 5,864 gram CBA dilarutkan kedalam satu bagian larutan NaOH. Kemudian larutan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu 60°C selama 1 jam.
- 5) Pembuatan Larutan Silika Alumina
Larutan Sodium aluminat ditambahkan kedalam larutan sodium silikat kemudian diaduk menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu 60°C selama 1 jam. Pada larutan ini diberikan perlakuan variasi waktu *aging* 0,12,24,dan 36 jam.
- 6) Sintesis Zeolit LTA
Larutan silika alumina yang telah diberi perlakuan variasi waktu *aging*, dimasukkan kedalam botol polipropilen dan direaksikan secara hidrotermal pada *water bath*. Proses kristalisasi menggunakan metode *step*

change temperature dengan suhu *step change* $T_1 = 90^\circ\text{C}$ dan $T_2 = 95^\circ\text{C}$ dan waktu *step change* $t_1 = 1,5$ jam dan $t_2 = 2,5$ jam.

Larutan Silika Alumina yang telah selesai dikeluarkan dari alat *water bath*. Kemudian larutan dipisahkan antara fasa padatan dengan cairannya menggunakan kertas saring. Padatan produk Zeolit LTA hasil penyaringan, dicuci menggunakan aquades hingga diperoleh pH netral. Kemudian padatan disaring kembali menggunakan kertas saring dan dikeringkan menggunakan oven dengan suhu 100°C selama 2 jam untuk dihilangkan kandungan airnya. Padatan yang telah dikeringkan didinginkan, kemudian siap untuk dianalisis.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Kalsinasi *Coal Bottom Ash* (CBA)

Proses kalsinasi bertujuan untuk mengurangi kadar karbon yang terdapat di dalam CBA, adanya kandungan karbon di dalam CBA diindikasikan dapat mempengaruhi proses pembentukan kristal zeolit LTA. Hal ini disebabkan karena terjerapnya sebagian larutan NaOH kedalam karbon sehingga mengurangi kemampuan NaOH sebagai pelarut Si dan Al yang berperan sebagai pembentuk kristal zeolit LTA. CBA yang telah dikalsinasi ditunjukkan secara fisis dengan warna padatan CBA yang lebih bewarna terang (keabuan hingga kekuningan) yang

menunjukkan adanya pengurangan jumlah karbon dibandingkan tanpa kalsinasi yang bewarna hitam pekat yang ditunjukkan pada gambar 1. Hal ini didasarkan pada penelitian yang telah dilakukan oleh Londar dkk (2015) yang memvariasikan karbon pada abu dasar dengan media hidrotermal terhadap pembentukan zeolit yang memperoleh hasil berupa intensitas kristalinitas zeolit yang semakin rendah dengan komposisi karbon pada abu dasar 5, 10, 15, dan 20% yang lebih rendah dibandingkan zeolit tanpa karbon dengan menggunakan variasi waktu hidrotermal 12, 24, 72, dan 144 jam.

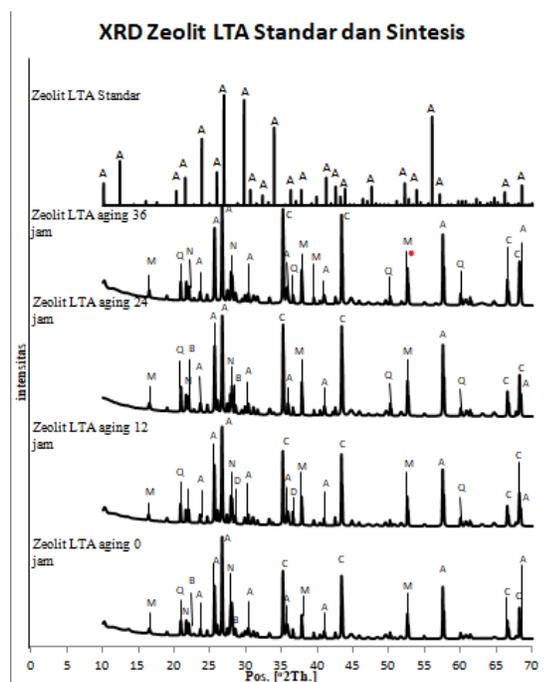


Gambar 1. Zeolit LTA sebelum dan setelah Kalsinasi. (a) Zeolit LTA sebelum Kalsinasi. (b) Zeolit LTA setelah Kalsinasi.

3.2. X-Ray Diffraction (XRD)

Dilakukan analisis XRD menggunakan alat Philips-binary (*scan*). Hasil analisis XRD ditampilkan pada Gambar 2. Hasil analisis XRD zeolit LTA *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam menunjukkan adanya puncak spesifik dari zeolit LTA yang sesuai dengan puncak spesifik dari

zeolit LTA standar. Hal tersebut menandakan bahwa bahan baku *coal bottom ash* terkalsinasi berubah menjadi produk zeolit LTA. Nilai persen kristalinitas produk dihitung berdasarkan jurnal *Estimation Of Crystallinity In FAZ-A Using XRD And IR Spectroscopy* [Rayalu dkk, 2005]. Metode perhitungan kristalinitas yang digunakan adalah dengan membandingkan sepuluh intensitas Zeolit LTA standar dengan pos [$^{\circ}2\text{Th.}$] yang sama pada masing-masing Zeolit Sintesis.



Gambar 2. Pola Difraksi Zeolit LTA Standard dan

Zeolit LTA variasi waktu *aging*.

Keterangan Gambar :

- A = Zeolit LTA
- N = Anorthite
- C = Corondum
- D = Labradorite
- M= Mullite
- Q = Quartz
- B = Albite

Tabel 1. Kristalinitas Zeolit LTA Sintesis

Sampel Zeolit	Waktu Aging	Kristalinitas Relatif (%)
1	0 jam	37,55
2	12 jam	39,87
3	24 jam	42,13
4	36 jam	43,89

Pada Tabel 1 dapat diketahui bahwa zeolit LTA telah berhasil disintesis pada variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36. Selama proses *aging* nukleus kristal sangat berpotensi terbentuk di dalam gel alumina silika. Nukleus kristal tumbuh menjadi kristal ketika terjadi kontak antara nukleus dengan spesies reaktif yang berpindah dari permukaan larutan gel alumina silika menuju bagian permukaan inti tumbuh atau nukleus selama proses presipitasi hidrogel dan *aging* hidrogel. Bertambahnya penggunaan waktu *aging* akan menghasilkan pembentukan inti nukleus yang ada pada gel alumina silika. Sehingga, keseluruhan reaksi akan menjadi lebih cepat, dan ukuran produk kristal yang terbentuk menjadi lebih kecil [Palcic dkk, 2012].

Disimpulkan bahwa gel *sodium alumina silika* akan menghasilkan lebih banyak kristal pada waktu *aging* yang lebih lama.

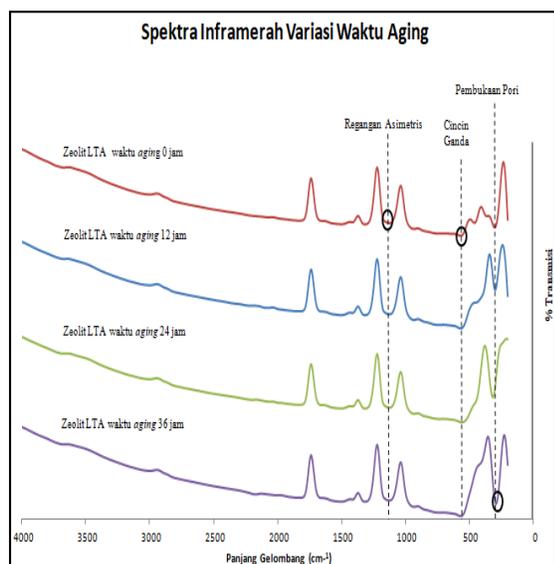
3.2. Fourier Transform Infrared (FTIR)

Dilakukan analisis FTIR menggunakan alat Shimadzu Type:IR *Prestige 21* dengan bilangan gelombang $400-4000\text{ cm}^{-1}$. Karakterisasi FTIR pada zeolit LTA

dilakukan untuk menentukan ikatan antar atom dan mengetahui gugus fungsi pada sampel sehingga dapat membantu memberikan informasi dalam memperkirakan struktur molekul. Pada Tabel 2 menunjukkan bilangan gelombang pada zeolit LTA sintesis. Dan pada Gambar 3 menunjukkan spektra inframerah zeolit LTA sintesis.

Tabel 2. Bilangan Gelombang Zeolit LTA Sintesis

Karakteristik Gelombang	Zeolit LTA Standar (Janjira, 2002)	Zeolit LTA Aging (jam)			
		0	12	24	36
Regangan Asimetris	1007	112	1126	112	112
Regangan Simetris	668	-	704	-	-
Vibrasi Cincin Ganda	555	568	567	583	568
Vibrasi tekuk ikatan	465	469	-	-	-
Pembukaan Pori	378	301	-	316	-



Gambar 3. FTIR Zeolit LTA Sintesis

Berdasarkan Gambar 3 dapat diketahui bahwa pada zeolit waktu *aging* 0 jam terdapat pita serapan pada 469 cm^{-1} yang menunjukkan

adanya vibrasi tekuk ikatan Si-O/Al-O. Kemudian terdapat pita serapan gelombang 568 cm^{-1} yang menunjukkan adanya eksternal dari cincin ganda D4R atau D6R. Selain itu, pada sampel ini juga terdapat bilangan gelombang pada 1126 cm^{-1} yang menunjukkan adanya rentang asimetris O-Si-O atau O-Al-O. Sedangkan pada bilangan gelombang 301 cm^{-1} menunjukkan pembukaan pori pada zeolit LTA sintesis.

Pada zeolit waktu *aging* 12 jam terdapat pita serapan gelombang 567 cm^{-1} yang menunjukkan adanya eksternal dari cincin ganda D4R atau D6R. Selain itu, pada sampel ini juga terdapat bilangan gelombang pada 704 cm^{-1} yang menunjukkan adanya rentang simetris. Sedangkan pada bilangan gelombang 1126 cm^{-1} menunjukkan regangan asimetris O-Si-O atau O-Al-O pada zeolit LTA sintesis.

Sedangkan pada zeolit waktu *aging* 24 jam terdapat pita serapan gelombang 583 cm^{-1} yang menunjukkan adanya eksternal dari cincin ganda D4R atau D6R. Pada sampel ini juga terdapat bilangan gelombang pada 1125 cm^{-1} yang menunjukkan adanya rentang asimetris O-Si-O atau O-Al-O. Sedangkan pada bilangan gelombang 316 cm^{-1} menunjukkan pembukaan pori pada zeolit LTA sintesis.

Pada zeolit waktu *aging* 36 jam terdapat pita serapan gelombang 568 cm^{-1} yang menunjukkan adanya

eksternal dari cincin ganda D4R atau D6R. Selanjutnya, terdapat bilangan gelombang pada 1126 cm^{-1} yang menunjukkan adanya rentang asimetris O-Si-O atau O-Al-O.

Terbentuknya zeolit LTA ditandai dengan adanya pita serapan pada bilangan gelombang $500\text{-}650 \text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan vibrasi eksternal dari cincin ganda D4R atau D6R [Rois dkk,2007]. Pada gambar 3 menunjukkan *spectra* IR dari sampel zeolite LTA variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam yang memperlihatkan pita absorpsi yang serupa dengan Zeolit LTA standar yaitu pada bilangan gelombang 568 ; 567 ; 538 ; dan 568 cm^{-1} . Dari data tersebut terlihat bahwa telah terbentuk adanya kristal Zeolit LTA.

Pita absorpsi pada bilangan gelombang antara $950\text{-}1250 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan bahwa adanya struktur internal tetrahedral O-T-O yang disebabkan vibrasi regangan asimetris pada sampel. Hal ini sesuai dengan penelitian yang telah dilakukan sebelumnya oleh Loiola dkk (2010) diperoleh puncak gelombang sekitar 1001 cm^{-1} yang menunjukkan adanya struktur internal tetrahedral O-T-O yang disebabkan vibrasi regangan asimetris pada sampel. Pada gambar 3 menunjukkan *spectra* IR dari sampel zeolite LTA variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam yang memperlihatkan pita absorpsi yang serupa dengan Zeolit LTA standar.

Selanjutnya pita absorpsi pada bilangan gelombang $420\text{-}500 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi tekuk ikatan Si-O/Al-O yang menunjukkan bahwa telah terbentuknya cincin 4R dan 6R akibat dari tekukan antara ikatan T-O-T. Pada gambar 3 menunjukkan *spectra* IR dari sampel zeolite LTA variasi waktu *aging* 0 jam yang memperlihatkan pita absorpsi yang serupa dengan Zeolit LTA standar yaitu pada gelombang 469 cm^{-1} [Loiola dkk,2010].

Kemudian pita absorpsi pada bilangan gelombang antara $300 - 400 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan terjadinya pembukaan pori pada susunan *cages* yang terbentuk [Saraswati,2015]. Pada gambar 3 menunjukkan *spectra* IR dari sampel zeolite LTA variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam yang memperlihatkan pita absorpsi yang serupa dengan Zeolit LTA standar. Pada hasil analisis FTIR yang telah dilakukan untuk sintesis zeolit LTA dengan variasi waktu *aging*, dapat diambil kesimpulan bahwa keempat zeolit tersebut telah berhasil menjadi produk zeolit LTA dengan ciri khas zeolit LTA yang memiliki serapan pita gelombang vibrasi cincin ganda D4R atau D6R. Lembah dari zeolit LTA yang *diaging* menjadi lebih kuat dan tajam seiring dengan meningkatkan waktu *aging*. Hal ini menunjukkan bahwa terjadi peningkatan derajat polimerisasi dari tetrahedral SiO_4 dan munculnya benih (*seed*) kristal dari zeolit LTA dikarenakan adanya kehadiran dari natrium aluminasilika [Tong dkk, 2014].

3.3. Brunaur, Emmet, and Teller (BET)

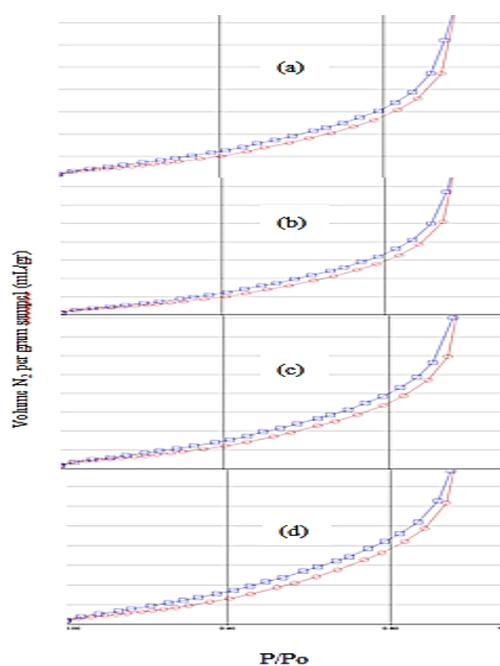
Dilakukan analisis BET menggunakan alat *Quantachrome instrument*. Karakterisasi BET pada zeolit LTA bertujuan untuk mengetahui luas permukaan spesifik, volume pori, dan diameter pori dari zeolit LTA yang dihasilkan. Metode analisis BET adalah dengan melakukan adsorpsi-desorpsi N_2 untuk tipe *loop* histerisis pada material. Hasil analisis BET ditampilkan pada Tabel 3, Gambar 4, dan Gambar 5.

Tabel 3. Hasil Analisis BET Zeolit LTA Sintesis

Variasi Waktu Aging (jam)	Luas Permukaan (m^2/g)	Total Volume Pori (cc/g)	Ukuran Pori Rata-Rata (Å)
0	11,48	0,0613	106,77
12	11,49	0,0536	93,36
24	13,73	0,0692	100,82
36	15,49	0,0698	90,21

Pada Tabel 3 dapat dilihat adanya peningkatan waktu *aging* semakin besar luas permukaan yang diperoleh. Luas permukaan terbesar didapat dengan variasi waktu *aging* 36 jam yaitu $15,49 m^2/g$, dan luas permukaan terkecil didapat dengan variasi waktu *aging* 0 jam sebesar $11,48 m^2/g$. Luas permukaan zeolit sangat berpengaruh terhadap kemampuan zeolit sebagai adsorben. Jika luas permukaan

zeolit semakin besar, maka kemampuan zeolit untuk mengadsorpsi senyawa-senyawa lain akan semakin baik. Hal ini disebabkan oleh permukaan interaksi yang lebih luas [Khaidir,2011]. Ukuran pori rata-rata yang dihasilkan menunjukkan bahwa Zeolit LTA yang telah terbentuk memiliki kisaran diameter mesopori ($20 \text{ Å} - 500 \text{ Å}$) [Greg,1982].



Gambar 4. Grafik Isoterm Zeolit LTA Sintesis

Keterangan : 

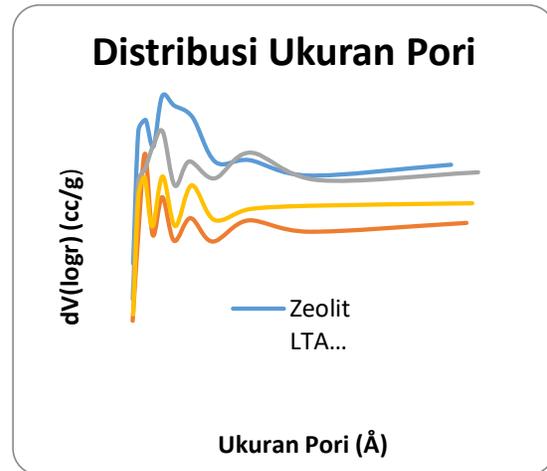
Berdasarkan Grafik isoterm Zeolit LTA Sintesis pada gambar 4 dan klasifikasi IUPAC (*International Union of Pure and Applied Chemistry*), zeolit LTA sintesis memiliki percabangan atau *loop* histerisis tipe H3 yang menunjukkan bentuk pori celah lebar [Gregg,1982]. Histerisis atau percabangan antara garis adsorpsi

dan desorpsi dapat dikaitkan dengan fasa metastabilitas. Percabangan ini terjadi karena tertundanya kondensasi yang mengakibatkan fasa adsorpsi menjadi metastabil. Hal ini terjadi karena tidak adanya kesetimbangan termodinamika yang tercapai selama proses adsorpsi berlangsung [Thommes,2015].

Untuk mengetahui ukuran dan volume pori, maka dilakukan analisis distribusi ukuran pori zeolit menggunakan metode *Barret, Joyner and Halenda* (BJH) pada zeolit LTA sintesis. Data distribusi pori zeolit LTA sintesis ditunjukkan pada Gambar 5.

Data distribusi pori pada Gambar 5 menunjukkan bahwa zeolit LTA sintesis memiliki ukuran pori yang tidak seragam namun masih berada pada rentang mikropori dan mesopori yaitu 10-130 Å. Pada zeolit waktu *aging* 12 jam, zeolit sintesis memiliki volume sebesar 0,0381 cc/g dengan ukuran pori sebesar 19,72 Å. Pada zeolit waktu *aging* 36 jam, zeolit sintesis memiliki volume sebesar 0,0413cc/g dengan ukuran pori sebesar 25,90 Å. Pada zeolit waktu *aging* 0 jam memiliki volume yang paling kecil dibandingkan zeolit sintesis yang lain yaitu sebesar 0,0371 cc/g dengan ukuran pori sebesar 23 Å. Pada zeolit waktu *aging* 36 jam, zeolit sintesis memiliki volume yang paling besar dibandingkan zeolit sintesis pada zeolit yang lain yaitu sebesar

0,0463 cc/g dengan ukuran pori sebesar 25,60 Å.



Gambar 5. Grafik Distribusi Ukuran Pori Zeolit LTA sintesis

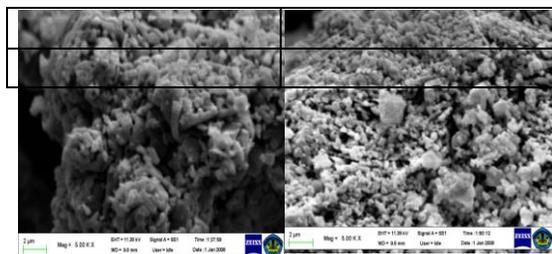
Pada rentang 40-180 Å, ukuran pori yang terbentuk besar sedangkan volume pori yang terbentuk kecil. Jika volume pori semakin kecil, maka daya tampung adsorbat yang terjerap dalam pori-pori Zeolit LTA akan semakin kecil juga. Ukuran pori juga akan mempengaruhi selektifitas zeolit terhadap senyawa yang akan masuk ke dalam rongga zeolit. Semakin sempit *range* distribusi ukuran pori zeolit, maka proses adsorpsi akan semakin selektif.

3.4. Scanning Electron Microscopy (SEM)

Dilakukan analisis SEM menggunakan alat Shimadzu. Karakterisasi SEM pada zeolit LTA bertujuan untuk mengetahui morfologi permukaan dan keseragaman ukuran partikel dari

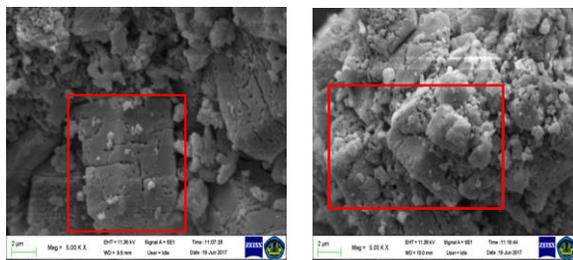
suatu sampel. SEM zeolit LTA sintesis ditunjukkan pada Gambar 6.

Berdasarkan pada Gambar 6 (a) dan (b) sampel dengan variasi waktu *aging* 0 dan 12 jam belum terlihat adanya bentuk partikel kubus yang umumnya mendominasi Zeolit LTA. Pada sampel Gambar 6 (c) dan (d) variasi waktu *aging* 24 dan 36 jam mulai terlihat adanya morfologi partikel berbentuk kubus yang belum seragam dan didominasi oleh bentuk yang tidak teratur. Hal ini berkesinambungan dengan hasil XRD yang menjelaskan bahwa produk Zeolit LTA variasi waktu *aging* 0, 12, 24, dan 36 jam yang terbentuk memiliki persen kristalinitas yang rendah yang dapat dilihat pada Tabel 1.



(a)

(b)



(c)

(d)

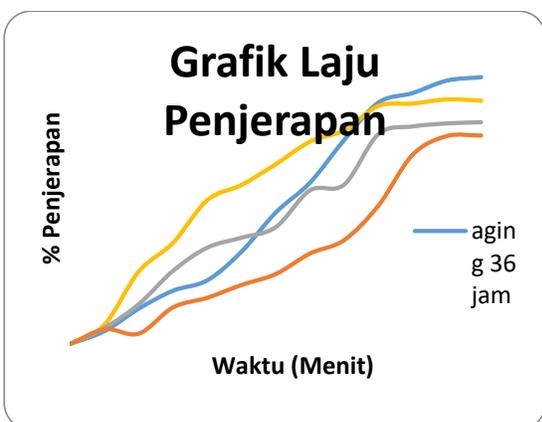
Gambar 6. Hasil SEM Zeolit LTA Sintesis
Keterangan :

(a) *aging* 0 jam, (b) *aging* 12 jam (c) *aging* 24 jam, (d) *aging* 36 jam

3.5. Uji Adsorpsi

Pada penelitian ini juga dilakukan uji adsorpsi terhadap air didalam etanol. Air bersifat polar dan sangat mudah teradsorpsi pada permukaan zeolit. Air mengisi rongga-rongga di dalam kristal zeolit. Begitu pula dengan zeolit LTA yang memiliki saluran terbuka yang cukup besar sehingga memudahkan air untuk bergerak keluar masuk struktur kristal.

Digunakan massa zeolit LTA variasi waktu *aging* sebanyak tiga gram untuk mengadsorb air dari campuran etanol-air. Data adsorpsi sampel diperoleh dari analisis menggunakan piknometer, untuk mengetahui densitas etanol setelah mengadsorb air setiap 5 menit. Data densitas yang diperoleh kemudian digunakan tabel perry untuk menghitung kadar etanol. Setelah kadar etanol diketahui, maka dapat dihitung pula kadar air dan pengurangan air di dalam etanol. Grafik laju penjerapan air disajikan pada Gambar 7 dan kadar penjerapan air dari campuran etanol-air pada masing-masing variabel waktu *aging* dengan kadar etanol awal 96% dapat dilihat pada Tabel 4.



Gambar 7. Laju Penjerapan Air oleh Zeolit LTA Sintesis

Pada Gambar 7 dapat diketahui dengan meningkatnya waktu penjerapan, maka kadar air yang terjerap akan semakin meningkat. Banyaknya kadar air terjerap dipengaruhi oleh volume pori. Volume pori yang telah terisi penuh dengan molekul-molekul air mengakibatkan adsorben dalam keadaan jenuh dan ditandai dengan kurva penjerapan yang landai pada Gambar 7.

Tabel 4. Kadar Air Terjerap

Waktu <i>aging</i> (jam)	waktu (menit)	(%) Kadar Etanol Akhir	(%) Kadar air dalam Etanol	(%) Penyerapan Air
0	60	98,46	1,54	60,08
12	60	98,60	1,40	63,87
24	60	98,84	1,16	70,04
36	60	99,10	0,90	76,84

Pada Tabel 4. Dapat dilihat persen penjerapan air terendah pada Zeolit LTA *aging* 0 jam sebanyak 60,08% dengan kadar etanol akhir sebesar 98,46%. Sedangkan penyerapan air tertinggi pada Zeolit LTA *aging* 36 jam sebanyak 76,84% selama 60

menit dengan kadar etanol akhir sebesar 99,10%.

Hasil uji penjerapan air ini mendukung hasil analisis BET, pada Tabel 3 didapatkan luas permukaan terbesar yaitu pada variasi waktu *aging* 36 jam sedangkan luas permukaan terkecil yaitu pada variasi waktu *aging* 0 jam. Hal ini sesuai dengan pernyataan (Khaidir, 2011) yang mengatakan luas permukaan zeolit sangat berpengaruh terhadap kemampuan zeolit sebagai adsorben. Jika luas permukaan zeolit semakin besar, maka kemampuan zeolit untuk menyerap senyawa-senyawa lain akan semakin baik hal ini disebabkan oleh permukaan interaksi yang lebih luas.

4. Kesimpulan

Hasil analisis XRD pada semua variasi waktu *aging* menunjukkan bahwa Zeolit LTA telah terbentuk dengan persen kristalinitas terendah yaitu 37,55% pada variasi waktu *aging* 0 jam dan persen kristalinitas tertinggi yaitu 43,88% pada variasi waktu *aging* 36 jam. Hasil analisis SEM menunjukkan telah adanya morfologi pola kubus sesuai Zeolit LTA standar pada variasi waktu *aging* 24 dan 36 jam. Hasil analisis FTIR menunjukkan semua hasil Zeolit LTA sintesis memiliki bilangan gelombang inframerah pada rentang 550-600 cm^{-1} yang merupakan ciri khas struktur *double ring* yang menandakan telah terbentuknya Zeolit LTA. Hasil BET dianalisis

dengan metode BJH (*Barret, Joiner, Halenda*) menunjukkan ukuran pori zeolit LTA sintesis telah menghasilkan ukuran mesopori dengan rentang ukuran pori 20 Å - 500 Å dan zeolit sintesis memiliki luas permukaan terkecil yaitu 11,49 m²/g pada variasi waktu *aging* 0 jam dan luas permukaan terbesar yaitu 15,48 m²/g pada variasi waktu *aging* 36 jam.

Daftar Pustaka

- Alfaro,S., Rodriguez,R.C., Valenzuela,M., Bosch,P. 2007. Aging Time Effect on The Synthesis of Small Crystal LTA Zeolites in The Absence of Organic Template. Elsevier : Meksiko.
- Carlos Alberto, Craig Denver and Oscar Mauricio. 2010. *Synthesis of zeolite from thermally treated kaolinite*. Columbia. Universidad de Pamplona.
- Gregg SJ & Sing KSW. 1982. Adsorption, *Surface Area and Porosity*.2nd Edition, London: Academic Press.
- Hui dan Chao. 2006. *Effects of Step-Change ff Synthesis Temperature on Synthesis of Zeolite 4A From Coal Fly Ash*. Hong kong Unuiversity of Science and Technology : Hongkong.
- Janjira W. 2002. *Synthesis And Kinetic Study Of Zeolite Na-A From Thai Kaolin*. Thesis. Suranaree: Suranaree University Of Technology.
- Khaidir. 2011. *Modifikasi Zeolit Alam sebagai Material Molecular Sieve dan Aplikasinya pada Proses Dehidrasi Bioetanol*. Tesis Program Studi S2 Teknologi Industri Pertanian. Bogor
- Loiola,R.A., Andrade,A.R.C.J., Sasaki,M.J., da Silva,D.R.L. 2010. *Structural analysis of zeolite NaA synthesized by a cost-effective hydrothermal method using kaolin and its use as water softener*. Journal of Colloid and Interface Science 367 (2012) 34–39
- Londar,E., Fansuri,H., Widiastuti,N. 2015.*Pengaruh Karbon Terhadap Pembentukan Zeolit Dari Abu Dasar Dengan Metode Hidrotermal Langsung*. Laboratorium Kimia Anorganik, FMIPA, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
- Mirfendereski dan Mohammadi. 2016. *Effects of Synthesis Parameters on the Characteristics of Naa Type Zeolite Nanoparticles*. Iran : *Shahid Beheshti University Chemical Engineering and Analytical Science*.
- Onuki S. 2006. *Bioethanol : Industrial production process and recent studies*. www. public. iastate. edu/~tge/courses/ce521/sonuki. pdf. [28 Februari 2018].

- Palcic,A., Sekovinac,L., Subotic,B., Bronic,J. 2012. *Zeolite A Synthesis under Dynamic Conditions, after Hydrogel Ageing*. Ruder Boskovic Institute : Kroasia.
- Rangkuti, A Faisal. 2016. *Aplikasi Proses Pervaporasi*.Bandung : Institut Teknologi Bandung
- Rayalu, S.S., Udhoji, J.S., S.U. Meshram., R.R. Naidu and S. Devotta, 2005. Estimation of crystallinity in flyash- based zeolite-A using XRD and IR Spectroscopy. India. Current Science, Vol.89, No.12.
- Rois,A.C., Williams,D.C., Maple,M. 2007. *Synthesis of Zeolites and Zeotypes by Hidrothermal Transformation of Kaolinite and Metakaolinite*. BISTUA Vol. 5 No.1 Pag. 15 – 26
- Saraswati.2015. *Zeolite A Synthesis from Glass*. J. Sains dan Mat vol.23 no.4
- Sharma dkk. 2015. *Synthesis of Zeolite Nanomolecular Sieves of Different Si/Al Ratios*. Republic of Korea
- Sowerby, B. and Crittenden, B.D.1988. *An experimental comparison of type A molecular sieves for drying the ethanol–water azeotrope*. Gas Sep Purif, 2: 77–83.
- Thommes,M., Kaneko,K., Neimark,V.A., Olivier,P.J.,Reinoso,R.F., Rouquerol,J., Sing,W.S. 2015. *Physisorption of Gases, with Special Reference to The Evaluation of Surface Area And Pore Size Distribution (IUPAC Technical Report*. IUPAC & De Gruyter
- Tong,F., Ji,W., Li,M., Zeng,C. 2014. *Investigation of the crystallization of zeolite A from hydrogels aged under high pressure*.