

DOI: doi.org/10.21009/SPEKTRA.033.05

Received: 13 September 2018
Revised: 26 October 2018
Accepted: 30 December 2018
Published: 30 December 2018

SYNTHESIS OF SODALITE ZEOLITE FROM COAL BOTTOM ASH WITH VARIATION OF NaAlO_2 CONCENTRATION USING ALKALI MELTING HYDROTHERMAL METHOD

Rahmatul Hanifah^{1,a)}, Dwi Puryanti^{2,b)}, Afdhal Muttaqin^{1,c)}

¹*Jurusan Fisika, Fakultas MIPA, Universitas Andalas Padang, 25163 Indonesia*

²*Laboratorium Fisika Material Jurusan Fisika, Universitas Andalas Padang, 25163 Indonesia*

Email: ^{a)}r.hanifah17@gmail.com, ^{b)}dwipuryanti@fmipa.unand.ac.id, ^{c)}allzputra@gmail.com

Abstrak

Sintesis zeolit dari abu dasar batubara telah dilakukan menggunakan metode peleburan alkali hidrotermal dengan variasi konsentrasi NaAlO_2 . Variasi konsentrasi NaAlO_2 yang digunakan adalah 2,5 M (Z1), 2 M (Z2), 1,5 M (Z3), dan 1 M (Z4). Abu dasar dan NaOH dilebur selama 3 jam pada suhu 750°C. Sampel kemudian dipanaskan melalui proses hidrotermal dengan medium kristalisasi NaAlO_2 . Kemudian sampel dinetralkan dengan aquades hingga mencapai pH 9-10. Karakterisasi sampel yang dilakukan meliputi karakterisasi jenis zeolit menggunakan XRD. Hasil karakterisasi menggunakan XRD menunjukkan bahwa zeolit yang terbentuk pada sampel Z1, Z2, dan Z3 berupa zeolit jenis sodalit dan pada sampel Z4 zeolit jenis sodalit, nosean, dan megakalsilit. Kemurnian sodalit paling tinggi diperoleh pada sampel Z3, yaitu 73 %.

Kata-kata kunci: zeolit, abu dasar, alkali hidrotermal, sodalit.

Abstract

Synthesis of zeolites from bottom ash using alkali melting hydrothermal method with variation concentration of NaAlO_2 solution had been done. Concentration of NaAlO_2 solution was varied for 2,5 M (Z1), 2 M (Z2), 1,5 M (Z3) and 1 M (Z4). The bottom ash and NaOH are melted for 3 hours at 750°C. Then, the sample is heated through a hydrothermal process with NaAlO_2 crystallization medium. Then the sample is neutralized with aquades up to pH 9-10. Characterization of sample includes characterization zeolite type using of. The results of characterization using XRD show that the zeolite formed on samples Z1, Z2, and Z3 are zeolites of sodalite type and on Z4 sample of zeolite type are sodalit, nosean, and megakalsilit. The highest sodalite purity was obtained in Z3 sample, which is 73%.

Keywords: zeolite, bottom ash, alkali hydrothermal, sodalite.

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan material nanopori [1] yang memiliki berbagai kegunaan, diantaranya sebagai adsorben, penukar kation, sensor, katalis, dan penyaring molekul [2]. Selain itu, zeolit juga dapat dimanfaatkan sebagai material semikonduktor [3]. Namun, dalam pemanfaatannya, zeolit alam memiliki beberapa kelemahan, salah satunya memiliki banyak pengotor, sehingga dapat mengurangi aktivitas dari zeolit. Oleh sebab itu, sejak tahun 1948 Union Carbide mengawali sintesis zeolit

sebagai molecular sieve dalam proses adsorpsi untuk pemurnian, pemisahan, dan katalis [4]. Sintesis zeolit dapat menggunakan bahan dasar berupa limbah yang mengandung unsur Si dan Al.

Salah satu limbah yang mengandung unsur Si dan Al yang dapat digunakan sebagai bahan dasar untuk mensintesis zeolit adalah limbah batubara, baik berupa abu layang maupun abu dasar. Pemanfaatan limbah batubara sebagai bahan dasar zeolit menghasilkan berbagai jenis zeolit, diantaranya zeolit tipe X, P, A dan sodalit [5], zeolit Na-X, Na-P, hidroksisodolit dan kuarsa [6], zeolit Na-X, Na-P, hidroksisodolit [7], zeolit Na, Na-A, P dan unnamed zeolite [8], zeolit A, zeolit Na-X, zeolit Na-P, sodalit, kuarsa, hidroksisodolit [9], dan zeolit Na-P, sodalit, philipsite [10].

Nurhabibah dan Muttaqin [11] menyintesis zeolit dari abu dasar batubara menggunakan metode peleburan alkali hidrotermal dengan temperatur peleburan 750°C. Media kristalisasi yang digunakan yaitu larutan NaAlO₂ dengan konsentrasi 3 M. Pada penelitiannya, diperoleh sodalit sebanyak 66,6% dengan waktu peleburan selama 3 jam. Selain sodalit, juga diperoleh hasil samping berupa mineral Bohmit yang hanya terdiri dari unsur Al. Munculnya mineral Bohmit kemungkinan diakibatkan oleh kelebihan unsur Al pada larutan NaAlO₂ yang ditambahkan. Oleh sebab itu, pada penelitian ini akan digunakan larutan NaAlO₂ dengan variasi konsentrasi 2,5 M, 2 M, 1,5 M, 1 M, agar diperoleh sodalit dengan tingkat kemurnian yang lebih tinggi.

Di antara semua kelompok material zeolit, hanya sodalit (SOD) yang diperoleh sebagai kristal tunggal. Sodalit merupakan material tuan rumah (host molecule) yang penting untuk menciptakan susunan periodik sederhana dari berbagai jenis zeolit sintesis. Sodalit bukan hanya penyusun kerangka dari zeolit A (LTA), tetapi zeolit merupakan unit penyusun kerangka pada jenis zeolit yang lain seperti Hexagonal MFI (EMT), Faujasit (FAU), Franzinite (FRA), Giuseppettite (GIU), Linde Type N (LTN), Marinellite (MAR), dan Tschortnerite (TSC) [12].

METODE

Sintesis Zeolit

Abu dasar batubara dikeringkan terlebih dahulu. Abu dasar batubara yang telah kering kemudian dihaluskan dan diayak dengan ayakan 200 mesh untuk mendapatkan ukuran yang lebih seragam. Kemudian 150 gram abu dasar dipanaskan menggunakan oven pada suhu 105°C untuk mengangkat atau menghilangkan unsur air. Setelah dipanaskan, lalu didinginkan dalam desikator. Abu dasar yang telah kering dibuat 4 buah sampel (12 gram) dan masing-masing dicampurkan dengan 14,4 gram NaOH yang telah dihaluskan, kemudian dihomogenkan. Sampel dilebur dengan cara dipanaskan di dalam furnace dengan suhu 750°C selama 3 jam, kemudian didinginkan, dihaluskan, lalu dilarutkan dengan 240 ml aquabidestilat.

Setelah dilarutkan, sampel tersebut diaduk dengan menggunakan magnetic stirrers selama 1 jam. Sampel kemudian dimasukkan ke dalam botol polietilen dan di aging selama 2 jam pada temperatur 30°C. Sampel tersebut lalu disaring menggunakan kertas saring untuk diambil ekstraknya. Masing-masing sampel kemudian dilarutkan dalam 50 ml larutan NaAlO₂ dengan variasi konsentrasi 2,5 M, 2 M, 1,5 M, 1 M. Sampel kemudian dimasukkan ke dalam reaktor hidrotermal (Teflon Autoclave). Selanjutnya sampel dimasukkan ke dalam oven dengan pengaturan temperatur 100°C (selama 12 jam).

Setelah dioven, sampel dipisahkan dari filtratnya, lalu dicuci dengan aquades hingga mendapatkan pH 9-10. Setelah diperoleh pH yang diinginkan, sampel kemudian dikeringkan pada temperatur 105°C selama 24 jam. Sehingga diperoleh zeolit aktif dalam bentuk serbuk.

Karakterisasi Zeolit

Untuk menentukan struktur Kristal dan jenis zeolit, diambil 0,3 g sampel dalam bentuk bubuk zeolit untuk dikarakterisasi menggunakan XRD (*X-Ray Diffraction*). Karakterisasi XRD bertujuan untuk memperoleh informasi senyawa atau kristal yang terbentuk dalam suatu material kristalin sehingga akan diketahui struktur, tipe dan ukuran kristal. Pola difraksi dan material zeolit sintesis yang diperoleh dengan menggunakan Difraktometer XRD merk PANalytical X'pert Pro, kondisi operasi melibatkan radiasi Cu pada 40 kV 30 mA. Sampel di-scan dari sudut 2θ = 10,0181– 99,9781.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini, zeolit dari abu dasar batubara disintesis menggunakan metode peleburan alkali hidrotermal dengan memvariasikan konsentrasi larutan NaAlO_2 sebagai media kristalisasi. Jumlah bubuk zeolit yang diperoleh dari hasil tersebut bervariasi, seperti pada Tabel 1.

TABEL 1. Massa sampel selama proses metode peleburan alkali hidrotermal

Sampel	Massa awal pencampuran abu dasar + NaOH (gram)	Massa setelah proses peleburan (gram)	Konsentrasi NaAlO_2	Massa akhir setelah proses Hidrotermal (gram)
Z1	26,4	23, 72	2,5 M	12, 96
Z2	26,4	23, 73	2 M	10, 48
Z3	26,4	23, 71	1,5 M	9, 55
Z4	26,4	23, 72	1 M	9, 28

Berdasarkan Tabel 1, terlihat perubahan massa sampel dari setiap proses. Massa setelah proses peleburan yaitu $\pm 23,72$ gram. Selain itu, keempat sampel juga memiliki massa yang relatif sama setelah proses peleburan, karena pada tahap *Dissolution* (pelepasan komponen Si dan Al) dan tahap *Condensation* (kondensasi komponen Si dan Al) perlakuan pada keempat sampel masih sama. Namun, perubahan massa yang cukup signifikan terjadi setelah proses hidrotermal, karena pada tahap ini terjadi pembentukan inti zeolit dan laju pertumbuhan kristal yang dipengaruhi oleh media kristalisasi. Sebagaimana yang terlihat pada Tabel 1, semakin tinggi konsentrasi NaAlO_2 yang digunakan, maka semakin banyak jumlah massa yang diperoleh setelah proses hidrotermal.

Selain mempengaruhi jumlah bubuk zeolit, variasi konsentrasi NaAlO_2 juga mempengaruhi warna bubuk zeolit yang dihasilkan. Bubuk zeolit mengalami perubahan warna menuju gelap seiring berkurangnya konsentrasi NaAlO_2 . Perbedaan warna bubuk zeolit dari keempat sampel menunjukkan perbedaan jenis zeolit, homogenitas, dan tingkat kemurnian zeolit yang dihasilkan.

Pada penelitian ini terbukti bahwa menurunkan konsentrasi NaAlO_2 yang digunakan dapat meningkatkan kemurnian zeolit dan mengurangi munculnya hasil samping berupa bohmit. Selain itu, variasi konsentrasi NaAlO_2 juga mempengaruhi jenis zeolit dan homogenitas zeolit yang dihasilkan, seperti yang terdapat pada Tabel 2. Hal ini menunjukkan bahwa proses *Nucleation* (pembentukan inti zeolit) dan *Crystal Growth* (pertumbuhan kristal zeolit) pada tiap-tiap sampel berbeda karena setiap perubahan rasio komposisi kimia zat penyusun zeolit sintesis berpengaruh terhadap hasil akhir dari proses sintesis zeolit.

TABEL 2. Hasil yang diperoleh dengan variasi konsentrasi NaAlO_2

Produk	Sampel			
	Z1	Z2	Z3	Z4
Sodalit (Zeolit)	62, 4 %	65,0 %	73,0%	49,0 %
Bohmite	15,8 %	10,0 %	7,0%	2,0 %
Katoite	21, 8 %	25,0 %	20,0%	16,0%
Nosean (Zeolit)	-	-	-	20,0%
Megakalsilit (Zeolit)	-	-	-	13,0%
Jumlah % zeolit	62, 4 %	65,0 %	73,0 %	82,0 %
Massa Zeolit	8,08 gram	6,81 gram	6,97 gram	7, 61 gram

Jenis zeolit yang diperoleh pada penelitian ini didominasi oleh zeolit jenis sodalit. Pada Tabel 2 terlihat bahwa tingkat kemurnian sodalit yang diperoleh pada sampel Z1, Z2, dan Z4 lebih rendah dibandingkan tingkat kemurnian sodalit yang diperoleh pada penelitian Nurhabibah [11]. Meskipun demikian, mineral bohmit yang diperoleh pada penelitian ini juga lebih sedikit dibandingkan yang terdapat pada penelitian Nurhabibah [11]. Namun, pada setiap sampel muncul hasil samping lain berupa katoite (*Calcium Aluminum Oxide Hydrate*) yang sebelumnya tidak diperoleh pada penelitian

Nurhabibah [11]. Katoit ($\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{O}_4\text{H}_4)_3$) merupakan mineral dengan struktur kristal kubik yang tidak memiliki pori seperti halnya zeolit.

Selain sodalit, pada sampel Z4 muncul zeolit jenis megakalsilit ($\text{K}(\text{AlSiO}_4)$) dan nosean $\text{Na}_8(\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24})(\text{SO}_4)$. Nosean merupakan jenis zeolit dengan struktur kristal berbentuk kubik. Nosean muncul akibat terjadinya transformasi zeolit jenis sodalit ($\text{Na}_8(\text{AlSiO}_4)_6(\text{NO}_3)_2$), yang berarti kerangka alumina silikatnya masih berupa kerangka sodalit. Perubahan sodalit menuju nosean pada sampel Z4 diakibatkan oleh terjadinya pergeseran posisi atom-atom penyusunnya. Selain itu, apabila diamati dari rumus molekulnya, terjadi pelepasan dua atom O serta atom N yang digantikan oleh atom S.

Berbeda dengan sodalit dan nosean, jenis zeolit megakalsilit memiliki struktur kristal hexagonal. Megakalsilit memiliki kerangka alumina silikat serta logam alkali atau alkali tanah yang berbeda dengan sodalit. Megakalsilit kemungkinan terbentuk akibat kekurangan unsur Na pada sampel Z4, sedangkan unsur Al dan Si yang merupakan unsur utama kerangka zeolit masih tersisa. Sehingga, rongga-rongga pada kerangka tetrahedral diisi oleh unsur K (potasium) yang berasal dari senyawa K_2O pada abu dasar batubara. Hal ini menunjukkan bahwa kemungkinan megakalsilit terbentuk setelah sodalit dan nosean.

Selain memperoleh sodalit dengan kemurnian yang paling tinggi dibandingkan sampel lainnya, pada sampel Z3 juga diperoleh ukuran kristal yang lebih kecil, dapat dilihat pada Tabel 3. Ukuran kristal yang diperoleh pada sampel Z3 yaitu 105, 912331 nm.

TABEL 3. Ukuran kristal sodalit yang diperoleh

Sampel	2θ	FWHM	Ukuran Kristal(nm)
Z1	24, 18	0, 1279	127, 109130
Z2	24, 16	0, 1279	127, 104380
Z3	24, 19	0, 1535	105, 912331
Z4	24, 22	0, 1279	137, 141098

Ukuran kristal setiap sampel yang terdapat pada Tabel 3 dihitung menggunakan persamaan Scherrer dengan mengambil puncak tertinggi yang berupa puncak sodalit. Berdasarkan Tabel 3, ukuran kristal sodalit dari keempat sampel berbeda. Ukuran kristal pada tiap-tiap sampel dipengaruhi oleh konsentrasi NaAlO_2 yang digunakan sebagai media kristalisasi, sehingga setiap sampel mengalami laju pertumbuhan kristal yang berbeda. Meskipun konsentrasi NaAlO_2 mempengaruhi ukuran kristal, namun pada penelitian ini tidak diperoleh hubungan yang linear antara konsentrasi NaAlO_2 dengan ukuran kristal sodalit yang diperoleh.

SIMPULAN

Mengurangi konsentrasi NaAlO_2 sebagai media kristalisasi pada metode peleburan alkali hidrotermal dengan waktu peleburan selama 3 jam mampu menaikkan kemurnian zeolit pada sampel. Selain sodalit, pada sampel Z4 juga diperoleh zeolit jenis nosean dan megakalsilit. Pada penelitian ini diperoleh hasil samping selain bohmit berupa mineral katoit. Selain mempengaruhi tingkat kemurnian zeolit, variasi konsentrasi NaAlO_2 juga mempengaruhi ukuran kristal. Ukuran kristal sodalit paling kecil diperoleh pada sampel Z3 yaitu 105, 912331 nm.

UCAPAN TERIMAKASIH

Terimakasih kepada pihak pemberi dana penelitian, kepada lembaga/ orang yang membantu penelitian, kepada orang yang membantu dalam diskusi.

REFERENSI

- [1] Auerbach, S., Carrado, K., Dutta, P., 2003, *Hand Book of Zeolite Science and Technology*, Marcel Dekker, Inc., New York.

- [2] Ahkam, M., 2011, Sintesis dan Karakterisasi Membran Nanozeolit Y untuk Aplikasi Pemisahan Gas Metanol-Etanol, *Skripsi*, Depart. Kimia, Universitas Indonesia, Depok.
- [3] Kalogeras, I. M. dan A. Dova, V., 1998, Electrical Properties of Zeolitic Catalyst, *Defect and Diffusion Forum*, Vol. 164 pp. 1-36,.
- [4] Las, T., 2004, Potensi Zeolit untuk Mengolah Limbah Industri dan Radioaktif, Rev. Agustus, P2PLR BATAN, Serpong.
- [5] Nikmah, R. A., 2008, Pengaruh Waktu dan perbandingan Si/Al Terhadap Pembentukan Zeolit A dari Abu Dasar Bebas Karbon dari PLTU PT. IPMOMI dengan Metode Hidrotermal, *Jurnal Zeolit Indonesia*, Vol. 7, No. 1. Hal. 42-52.
- [6] Lestari T. dan Muttaqin, A., 2015, Pengaruh Air Laut Terhadap Zeolit Sintetis Dari Bottom Ash Melalui Proses Alkali Hidrotermal, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 7, No. 1, hal. 19-27.
- [7] Waleza, R. J. dan Muttaqin, A., 2015, Pengaruh Waktu Refluks terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit Sintetik dari Abu Dasar, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 4, No. 4, hal. 17-23.
- [8] Sriwahyuni, N. dan Muttaqin A., 2014, Pengaruh Temperatur Peleburan Alkali terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit dari Bahan Abu Dasar Batubara dengan Metode Peleburan Alkali Hidrotermal, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 4, No. 1, hal. 24-30.
- [9] Oktaviani, Y. dan Muttaqin, A., 2015, Pengaruh Temperatur Hidrotermal Terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit Sintetis dari Abu dasar Batubara dengan Metode Alkali Hidrotermal, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 4, No. 4, Jur. Fisika Unand, hal. 358-364.
- [10] Sari, N. K. dan Muttaqin, A., 2016, Pengaruh Waktu Sonikasi terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit Berbahan Abu Dasar Batubara Menggunakan Metode Peleburan Alkali Hidrotermal, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 5, No. 4, hal. 322-326.
- [11] Nurhabibah dan Muttaqin, A., 2017, Pengaruh Waktu Peleburan Terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit Sintetis dari Abu dasar Batubara dengan Metode Peleburan Alkali Hidrotermal, *Jurnal Fisika Unand*, Vol. 6, No. 3, hal. 240-246.
- [12] Xu, R., Pang, W., Yu, J., Huo, Q. dan Chen, J., 2007, *Chemistry of Zeolites and Related Porous Materials: Syntesis and Structure*, John Wiley & Sons (Asia), Singapore.

