

Synthesis Zeolite Y From Lapindo Mud With Variations Filling Autoclave And Ratio Molar Si/Al

(Sintesis Zeolit Y Dari Lumpur Lapindo Dengan Variasi Keterisian Autoklaf dan Variasi Rasio Molar Si/Al)

Novita Andarini^{*}, Deys Sya'fatul Maziyyah, Tanti Haryati, Yudi Aris Sulistiyo, Suwardiyanto

*Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Jember,
Jl. Kalimantan No. 37 Sumbersari Jember, 68121 Indonesia*

ABSTRACT

Lapindo mud contains Silicate (SiO_2), and Aluminum oxide (Al_2O_3) that can be utilized to synthesize zeolite Y. Zeolite Y was synthesized from Lapindo mud via the smelting and hydrothermal method, respectively. The thermal activation of Lapindo mud was achieved by leaching smelting at 550°C for 2 hours with NaOH to achieve the desired adding SiO_2 , NaOH and aging for 48 hours. The effects of various parameters on the synthesis were investigated. The samples were characterized with X-ray Fluorescence (XRF), X-Ray Diffraction (XRD), Fourier Transformation Infrared Spectroscopy (FTIR) and Gas Sorption Analyzer (GSA). Zeolite Y with high crystallinity was synthesized under optimized conditions, such as filling autoclave 90% and a $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ molar ratio of 15.

Lumpur lapindo merupakan limbah yang mengandung SiO_2 53,40%, Al_2O_3 23,80% sehingga dapat dimanfaatkan sebagai bahan zeolit Y. Sintesis zeolit Y dilakukan dengan metode peleburan yang diikuti dengan proses hidrotermal. Perbandingan komposisi yang digunakan adalah $10\text{Na}_2\text{O}:1\text{Al}_2\text{O}_3:15\text{SiO}_2:300\text{H}_2\text{O}$ dengan variasi keterisian volume autoklaf 90%, 70%, dan 50% dan mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 10, 15 dan 20. Lumpur di-leaching dan dilebur dengan NaOH pada suhu 550°C selama 2 jam. Lumpur hasil peleburan digunakan sebagai prekursor zeolit Y didiamkan selama 48 jam. Suhu dan waktu hidrotermal yang digunakan 100°C - 105°C 24 jam. Hasil sintesis terbaik variasi keterisian autoklaf didapatkan pada keterisian 90% berdasarkan data XRD. Zeolit Y hasil variasi mol dikarakterisasi dengan XRF, XRD, FTIR dan GSA menunjukkan bahwa zeolit Y rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sebesar 15 merupakan hasil terbaik jika dilihat dari fasa kristalnya.

Keywords: Lapindo mud, Zeolite Y, Hydrothermal, Filling autoclave, Ratio molar Si/Al.

^{*}Corresponding author:
Novita Andarini
E-mail: novita.fmipa@unej.ac.id

PENDAHULUAN

Lumpur lapindo merupakan suatu bencana nasional yang diakibatkan kebocoran pengeboran pada kegiatan eksplorasi minyak dan gas bumi. Mineral yang seharusnya berada di dalam tanah terangkat ke atas dalam bentuk lumpur panas Sidoarjo. Semburan lumpur lapindo merupakan suatu limbah melimpah yang dapat mengganggu masyarakat dan merusak kondisi lingkungan sekitar. Berdasarkan hasil karakterisasi pada uji EDX menunjukkan bahwa lumpur lapindo mengandung senyawa silika dan alumina yang tinggi [1] dan dapat dimanfaatkan sebagai bahan pembentukan zeolite. Lumpur lapindo

mengandung senyawa SiO_2 53,40% ; Al_2O_3 23,80% ; Na_2O 5,59% ; Fe_2O_3 5,47% dan Cl 2,89% [2].

Zeolit adalah mineral dengan komponen utama silika dan alumina. Zeolit tipe Faujasit adalah molekular *sieves* aluminosilikat dengan kerangka berdensitas rendah yang terdiri dari saluran cincin tiga dimensi beranggotakan 12 (0,71 - 0,73 nm) yang memiliki *supercage* dengan diameter maksimum sekitar 1,3 nm [3]. Zeolite faujasite memiliki dua jenis yang dilihat dari kandungan rasio Si/Al yaitu zeolite X dan Y. Zeolit faujasite kaya silikon atau zeolit Y yang mempunyai rasio Si/Al antara 1,5-3 dan zeolite kaya aluminium atau zeolit X yang mempunyai rasio Si/Al antara 1 - 1,5. Zeolit faujasite (X, Y) dianggap sebagai

katalis utama dan penting dalam proses Hidrorefining [4].

Sintesis zeolit melibatkan pembentukan kristal buatan dalam kondisi reaksi yang mirip dengan pembentukan zeolit alam. Sampai saat ini metode solvotermal telah diadopsi dan dikembangkan untuk menghasilkan zeolit sintetis seperti metode hidrotermal (Sugano *et al.*, 2005), metode fusi alkali (Wajima *et al.*, 2008), metode sol-gel (Tsujiguchi *et al.*, 2014), dan metode pencucian alkali (Shoppert *et al.*, 2017) [5]. Kelebihan metode hidrotermal adalah menghasilkan kemurnian yang tinggi dan dapat dilakukan pada suhu rendah. Sintesis zeolit Y dilakukan dengan proses peleburan lumpur lapindo dengan NaOH lebih dahulu yang diikuti dengan metode hidrotermal. Sintesis zeolit Y dengan menggunakan metode hidrotermal perlu memperhatikan faktor-faktor yang mempengaruhi yaitu rasio molar Si/Al, tekanan, suhu dan waktu hidrotermal.

Toto dkk telah mensintesis zeolit Y dari lumpur lapindo dengan perbandingan mol komposisi yang digunakan $10\text{Na}_2\text{O}:1\text{Al}_2\text{O}_3:15\text{SiO}_2:300\text{H}_2\text{O}$ menghasilkan zeolit mirip faujasite sebesar 28,2% dengan rasio Si/Al sebesar 2,43 [6]. Zahro *et al.* [7] mensintesis zeolit Y dari ampas tebu dengan memvariasikan rasio molar Si/Al. Zeolit Y hasil sintesis yang didapat tidak murni karena ada campuran sedikit zeolit P dengan rasio Si/Al 2,5.

Pada penelitian ini dilakukan sintesis zeolit Y dengan variasi keterisian volume autoklaf yang dimaksudkan untuk variasi tekanan akibat perbedaan volume dan variasi rasio Si/Al. Tekanan dan rasio Si/Al mempunyai peran penting dalam menentukan struktur dan komposisi akhir produk [8]. Variasi keterisian volume autoklaf dilakukan dengan membedakan volume yang digunakan pada saat sintesis yaitu 90%, 70% dan 50% dengan kapasitas autoklaf sebesar 100 mL. Variasi rasio Si/Al dilakukan dengan memvariasikan komposisi SiO_2 dengan perbandingan 10, 15 dan 20 mol, waktu *aging* 48 jam dan dihidrotermal selama 24 jam pada rentang suhu 100°C - 105°C . Perlakuan awal lumpur lapindo menggunakan HCl dan peleburan menggunakan NaOH sebelum dihidrotermal. Selanjutnya zeolit Y hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan X-Ray Fluorescence (XRF) untuk mengetahui kandungan yang ada dalam lumpur dan X-Ray Diffraction (XRD) untuk mengidentifikasi kemurnian zeolit hasil sintesis. Gas

Sorption Analyzer (GSA) untuk mengetahui luas permukaan, serta spektrofotometri Fourier Transform-Infra Red (FT-IR) untuk mengetahui gugus fungsi dari zeolit hasil sintesis.

METODE

Alat

Penelitian ini menggunakan peralatan gelas, mortar dan alu, autoklaf, oven, ayakan 100 mesh, indikator pH universal, satu set alat refluks, stirer magnetik, neraca analitik merk Ohaus Analytical Plus, Muffle furnace 1400 merk Barnsted Termoyline, X-Ray Fluorescence (XRF) merk Bruker S2 Ranger, X-Ray Diffraction (XRD) merk Xpert MPD, Spektrofotometri Fourier Transform-Infra Red (FT-IR) merk Bruker Alpha, Gas Sorption Analyzer (GSA) merk Quantachome TouchWin V1.11.

Bahan

Penelitian ini menggunakan bahan-bahan antara lain lumpur lapindo dari Sidoarjo, natrium hidroksida NaOH (Merck, 99%), HCl (Merck, 37%), SiO_2 (merck), kertas saring biasa, kertas whatman No. 42, dan akuademin.

Prosedur Penelitian

Preparasi Sampel

Sampel lumpur lapindo diambil dari area denagn jarak 2 km dari pusat semburan. Lumpur Lapindo dicuci (800 g) dengan akuademin 1:2 (b/v) dan disaring agar terpisah dari pengotornya yaitu rumput-rumputan dan kerikil. Selanjutnya didekantasi untuk memisahkan lumpur dengan filtratnya dan dikeringkan selama 24 jam di oven pada suhu 100°C . Lumpur Lapindo yang sudah kering kemudian digerus dan diayak dengan ayakan 100 mesh.

Leaching

Lumpur yang sudah halus (10 g) direfluks dengan larutan HCl 2 M sebanyak 100 mL selama 1 jam dengan temperatur 90°C . Selanjutnya lumpur dicuci dengan akuademin sampai pH filtrat pencucian netral dan dikeringkan dalam oven.

Peleburan Alkali

Lumpur lapindo yang telah dileaching selanjutnya dicampur dengan NaOH dalam cawan porselen dengan perbandingan berat NaOH/Lumpur lapindo = 1,5. Selanjutnya campuran tersebut dipanaskan dalam muffle furnace selama 2 jam pada suhu 550°C .

Campuran kemudian didinginkan, digerus dan selanjutnya dianalisis dengan XRF dan XRD.

Sintesis dan Karakterisasi Zeolit Y Pembuatan larutan

Campuran hasil peleburan ditambah SiO₂ dan larutan NaOH sesuai perhitungan variasi keterisian autoklaf. Selanjutnya dilakukan proses pengadukan selama 4 jam pada suhu kamar ketika semua bahan telah ditambahkan dan didiamkan untuk proses *aging* selama 48 jam. Campuran kemudian disaring dan filtratnya diambil dengan volume sesuai keterisian autoklaf kemudian dimasukkan ke dalam autoklaf. Hal yang sama dilakukan untuk sintesis zeolit Y dengan variasi rasio molar Si/Al.

Proses Hidrotermal

Filtrat sampel yang telah dimasukkan dalam autoklaf kemudian dioven pada suhu 100°C-105°C selama 24 jam. Hasil sintesis terbaik divariasikan kembali dengan variasi rasio mol SiO₂/Al₂O₃ sebesar 10, 15 dan 20. Selanjutnya autoklaf dibiarkan dingin, kemudian sampel hasil hidrotermal didekantasi dan dicuci dengan akuademin sampai pH filtrat pencucian netral. Residu hasil filtrasi dikeringkan di dalam oven pada suhu 100°C sampai beratnya konstan, kemudian ditimbang massa yang dihasilkan.

Karakterisasi Zeolit

Zeolit dari hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan *X-Ray Diffractometer* (XRD), *X-Ray Fluorescence* (XRF), *Gas Sorption Analyzer* (GSA), dan Spektrofotometri *Fourier Transform-Infra Red* (FT-IR). Karakterisasi menggunakan XRD untuk mengidentifikasi struktur kristal dan kemurnian zeolit hasil sintesis, sedangkan XRF untuk mengetahui komposisi unsur-unsur dalam sampel zeolit Y. Karakterisasi BET untuk mengetahui luas permukaan dan Spektrofotometri FTIR untuk mengetahui gugus fungsi dari zeolit hasil sintesis.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakter Zeolit Y Hasil Sintesis dengan Variasi Keterisian Autoklaf Komposisi Zeolit Y

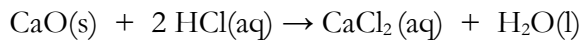
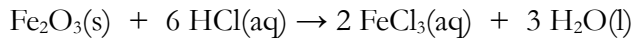
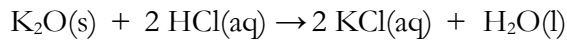
Zeolit Y yang disintesis dari lumpur lapindo sebagai precursor yang sebelumnya dikarakterisasi dengan XRF untuk mengetahui kandungan unsur-unsurnya setelah *dileaching* adalah untuk mengurangi pengotor

yang tidak diperlukan, seperti logam-logam oksida Fe₂O₃, CaO, K₂O. Kandungan lumpur setelah proses *leaching* masih mengandung pengotor terutama kandungan besi. Logam besi yang masih terkandung dalam lumpur sisa *leaching* diduga karena oksida besi masih belum semua terdekstruksi oleh HCl. Hal ini dikarenakan oksida besi yang terkandung dalam lumpur adalah hematit yang stabil pada temperatur ruang sampai dengan 100°C [8]. Selain itu, dapat disebabkan oleh beberapa faktor yang terjadi saat proses *leaching* antara lain konsentrasi HCl, waktu *leaching*, temperatur, dan perbandingan HCl dengan lumpur. Berdasarkan hasil analisis XRF, kandungan lumpur lapindo sebagian besar ditunjukkan di Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi lumpur hasil analisa XRF sebelum dan setelah *leaching*

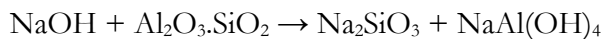
Komposisi Sebelum <i>Leaching</i>		Komposisi Setelah <i>Leaching</i>	
Unsur	Konsentrasi (%)	Unsur	Konsentrasi (%)
Si	34,7	Si	50,4
Al	12	Al	13
Fe	32,9	Fe	20,3
K	3,97	K	4,64
Ca	7,36	Ca	3,01
Mo	4,8	Mo	4,7
Ti	2,11	Ti	3,12

Berdasarkan Tabel 1 Komposisi alumina sedikit lebih besar dibandingkan dengan sebelum *leaching*. Hal ini terjadi dimungkinkan karena penurunan komposisi Fe₂O₃ yang tinggi yang lebih mudah larut dalam asam dibandingkan senyawa alumina (Al₂O₃) bersifat amfoter yang dapat bereaksi dengan molekul HCl membentuk senyawa aluminium klorida (AlCl₃) yang dapat larut dalam air. Berdasarkan Tabel 4.1 kandungan lumpur setelah proses *leaching* masih mengandung pengotor terutama kandungan besi. Logam besi yang terkandung dalam lumpur sisa *leaching* diduga karena oksida besi masih belum semua terdekstruksi oleh HCl. Beberapa faktor yang mempengaruhi saat proses *leaching* antara lain konsentrasi HCl, waktu *leaching*, temperatur, dan perbandingan HCl dengan lumpur. Tiga faktor tersebut memiliki pengaruh dengan banyaknya logam-logam oksida yang terlarut dalam larutan HCl. Reaksi pelarutan oksida logam terhadap HCl ditunjukkan pada persamaan berikut ini. Reaksi pelarutan oksida logam terhadap HCl ditunjukkan pada persamaan berikut ini :



Komposisi alumina pada Tabel 1 naik karena turunnya persentase unsur yang lain sehingga mempengaruhi persentase alumina dalam jumlah persen konsentrasi sebanyak 100%.

Lumpur hasil *leaching* yang dilebur dengan NaOH dikarakterisasi dengan XRD. Data yang didapatkan pada analisis XRF sampel lumpur hasil peleburan mengandung SiO₂ 27,53%, Al₂O₃ 6,36%, dan Na₂O 34,17%. Peleburan menggunakan NaOH untuk aktivasi dalam pembentukan natrium silikat dan natrium aluminat. Ion Na⁺ akan bereaksi dengan alumina dan silika yang terdapat dalam lumpur sehingga produk natrium silikat dan natrium alumina. Reaksi pada saat peleburan adalah:



Data analisis XRF tersebut digunakan sebagai indikator dalam penentuan massa SiO₂ dan NaOH yang harus ditambahkan dalam membuat perbandingan mol komposisi 10Na₂O:1Al₂O₃:15SiO₂:300H₂O Sampel zeolit Y hasil sintesis perbandingan mol komposisi 10Na₂O:1Al₂O₃:15SiO₂:300H₂O pada variasi keterisian autoklaf dikarakterisasi dengan XRF untuk melihat rasio Si/Al Zeolit Y hasil sintesis yang kemudian dibandingkan dengan rasio Si/Al yang disiapkan saat pembuatan Zeolit Y. Data rasio Si/Al zeolite Y pada Tabel 2 menunjukkan bahwa dengan rasio Si/Al yang disiapkan saat akan dihidrotermal berubah setelah hidrotermal menjadi lebih kecil yaitu dibawah 3. Hal ini menunjukkan bahwa hasil hidrotermal kemungkinan merupakan zeolite Y sebagaimana diketahui bahwa zeolite Y mempunyai rasio Si/Al 1,5-3. Penurunan rasio Si/Al yang tinggi karena sistem gel alkalinitas tinggi memfasilitasi nukleasi dan proses kristalisasi, namun umumnya menghasilkan kerangka rasio Si/Al yang rendah karena meningkatnya kelarutan silika. Menurunkan alkalinitas gel dapat membantu pembentukan lebih banyak zat antara dan produk polimer yang mengandung silika, akan tetapi menyebabkan

kristalisasi tidak lengkap karena peningkatan energi barrier untuk nukleasi dan pertumbuhan kristal [9].

Selain itu dapat dilihat bahwa menurunnya variasi keterisian autoklaf meningkatkan rasio Si/Al dari Zeolit Y yang dihasilkan. Hal ini terjadi kemungkinan disebabkan oleh tekanan uap yang semakin tinggi dengan meningkatnya keterisian autoklaf yang mempengaruhi kelarutan silika [10]. Meningkatnya rasio Si/Al pada keterisian autoklaf juga diikuti semakin berkurangnya pengotor kation sedangkan pengotor anion relatif tidak berbeda, karena semakin tinggi kandungan Si maka pembawa muatan negatif (Al) semakin kecil sehingga perlu sedikit kation untuk menetralkan. Pengotor pada sampel zeolit Y hasil sintesis pada variasi keterisian autoklaf ditunjukkan pada Tabel 3, pengotor yang paling besar adalah Fe.

Tabel 2. Rasio Molar Si/Al Sebelum dan Sesudah Hidrotermal

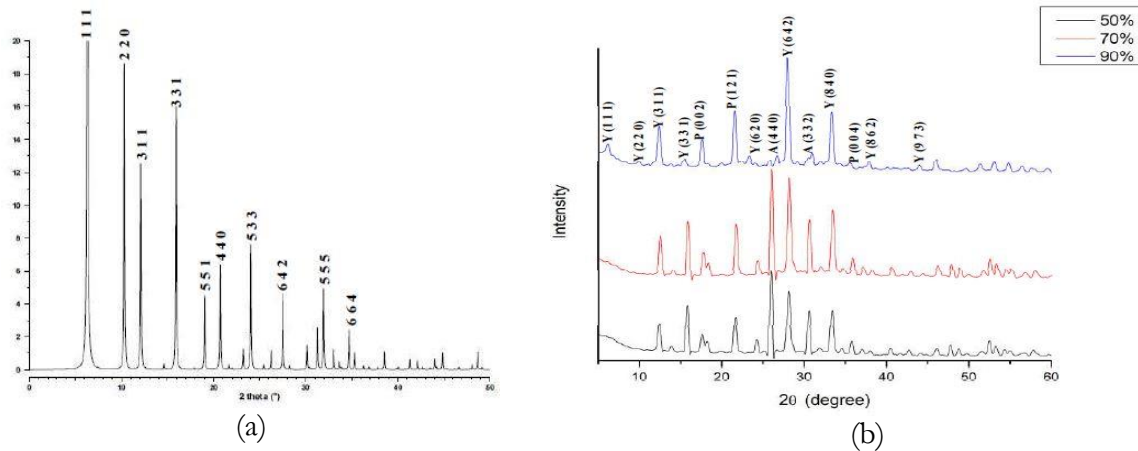
Sampel dengan Komposisi 10Na ₂ O:1Al ₂ O ₃ :15SiO ₂ :300 H ₂ O	Rasio Si/Al	
	Sebelum Hidrotermal	Sesudah Hidrotermal
Keterisian 50%	7,45	2,86
Keterisian 70%	7,52	2,73
Keterisian 90%	7,48	2,65

Tabel 3. Komposisi unsur-unsur dalam zeolit Y dengan berbagai variasi keterisian autoklaf hasil analisa XRF

Kandungan Unsur lain	Komposisi 10Na ₂ O:1Al ₂ O ₃ :15SiO ₂ :300 H ₂ O		
	Keterisian 90%	Keterisian 70%	Keterisian 50%
Fe	6,18 %	3,84 %	4,99 %
K	1,06 %	0,76 %	0,71 %
Ti	1,19 %	0,46 %	0,48 %
Cl	1,2 %	1,09 %	1,29 %

Struktur Kristal Zeolit Y

Zeolit Y hasil sintesis dengan variasi keterisian autoklaf yang dikarakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) menunjukkan Difraktogram dengan intensitas dan puncak yang berbeda-beda. Difraktogram zeolit Y standar dan difraktogram variasi keterisian autoklaf dapat dilihat pada Gambar 1.

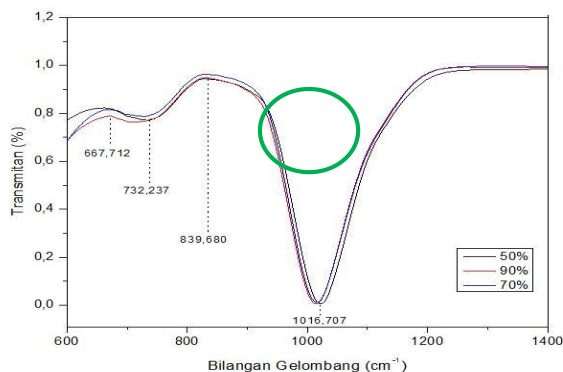


Gambar 1. (a) Difraktogram zeolit Y standar [8] (b) Difraktogram zeolit Y hasil sintesis variasi keterisian autoklaf

Berdasarkan difraktogram Gambar 1 zeolit hasil sintesis selain terdapat campuran dengan zeolit P, juga campuran dengan zeolit analcime. Kehadiran zeolit P muncul pada sudut 17° , 18° dan $35,95^\circ$ dengan intensitas lebih tinggi pada keterisian autoklaf 50% dan 70%, jika dibandingkan dengan keterisian autoklaf 90%. Intensitas puncak tertinggi pada setiap variasi berbeda-beda dimana intensitas tertinggi keterisian autoklaf 50% di sudut 2θ 25° , keterisian autoklaf 70% di sudut 2θ 26° yang merupakan ciri dari sudut zeolit analcime. Keterisian autoklaf 90% di sudut 2θ 27° merupakan ciri dari sudut zeolit Y standar. Ukuran kristal pada variasi keterisian autoklaf berada pada kisaran 39,38 nm-79,79 nm.

Interpretasi IR Zeolit Y

Daerah serapan pada analisis FTIR variasi keterisian autoklaf memiliki pola yang hampir sama dengan daerah serapan pada struktur aluminosilikat yang menandakan terbentuknya struktur zeolit. Hasil analisa FTIR keterisian autoklaf dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Spektra inframerah variasi keterisian autoklaf

Berdasarkan Gambar 2 dapat dilihat bahwa spektra yang terlihat jelas di daerah serapan sekitar 1000 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur asimetri Si-O-Al. Daerah serapan sekitar 700 cm^{-1} dari ketiga sampel zeolit Y hasil sintesis mewakili vibrasi ulur asimetri Si-O-Si [11]. Zeolit Y dengan rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ tinggi mempunyai frekuensi getaran yang lebih tinggi di daerah vibrasi ulur Si-O-Si, sebagaimana yang ditunjukkan oleh Gambar 2 terjadi kenaikan spektra pada frekuensi sampel zeolit Y keterisian 50%. Karakter spesifik cincin ganda pada zeolit Y hasil sintesis pada ketiga sampel variasi keterisian autoklaf ditunjukkan pada daerah serapan antara $653\text{-}670\text{ cm}^{-1}$ [12]. Spektra zeolit Y hasil sintesis dengan variasi keterisian mengalami pergeseran dengan peningkatan rasio molar Si/Al akibat berkurangnya jumlah Al-O pada kerangka zeolit.

Karakter Zeolit Y Hasil Sintesis dengan Variasi Mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$

Komposisi Zeolit Y

Rasio molar Si/Al pada zeolit Y yang telah disintesis dapat diketahui dari data hasil analisis XRF yang ditunjukkan pada Tabel 4. Rasio molar Si/Al pada ketiga sampel zeolit Y meningkat dengan bertambahnya SiO_2 yang ditambahkan. Hal ini diakibatkan karena perbedaan reaktivitas alumina dan silika dengan basa. Silika lebih reaktif dengan basa dibandingkan alumina karena sifat asam silika silikon lebih kuat dibandingkan alumina. Hal ini mengakibatkan produk garam silikat yang dihasilkan lebih banyak dibandingkan garam aluminat pada selang waktu reaksi yang sama.

Tabel 4. Rasio Si/Al hasil analisa XRF dalam zeolit Y pada berbagai variasi rasio mol SiO₂/Al₂O₃

Kandungan	Keterisian 90%		
	Rasio SiO ₂ /Al ₂ O ₃	Rasio SiO ₂ /Al ₂ O ₃	Rasio SiO ₂ /Al ₂ O ₃
Unsur	10	15	20
Si/Al	2,53	2,65	3,1

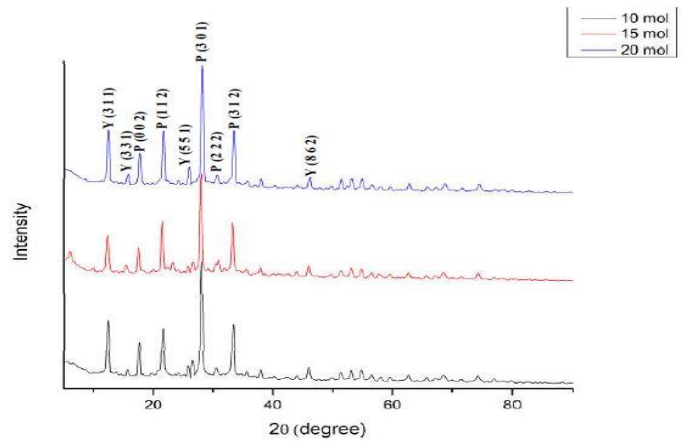
Keberadaan logam-logam pengotor mempengaruhi proses sintesis zeolit Y terutama kandungan oksida logam pengotor yang masih tinggi (oksida Fe) akan membentuk fase lain saat proses hidrotermal. Jumlah logam pengotor yang lain ditemukan lebih sedikit pada Zeolit Y dengan rasio Si/Al 2,65 sebagaimana ditunjukkan oleh Tabel 5, begitupula dengan logam pengotor Fe yang paling sedikit juga ada pada Zeolit Y dengan rasio Si/Al 2,65.

Tabel 5. Komposisi unsur lain dalam Zeolit Y pada berbagai variasi rasio mol SiO₂/Al₂O₃ hasil analisa XRF

Kandungan	Keterisian 90 %		
	Rasio Si/Al	Rasio Si/Al	Rasio Si/Al
Unsur lain	2,53	2,65	3,1
Fe	6,28 %	6,18%	6,61%
Ca	1,74 %	2,00 %	1,65 %
K	1,71 %	1,06 %	1,50 %
Ti	1,33 %	1,19 %	0,94 %
Cl	1,30 %	1,20 %	1,35 %

Struktur Kristal Zeolit Y

Analisis XRD pada variasi rasio Si/Al dimulai dari sudut 2θ 5-60°. Zeolit Y variasi rasio Si/Al hasil sintesis memiliki pola difraktogram yang berbeda. Sebagaimana yang ditunjukkan oleh Gambar 3 tampak bahwa ada perbedaan yang jelas pada difraktogram pada zeolit Y dengan rasio Si/Al 2,65 yaitu muncul puncak di sudut 2θ 6,31° dan 23,26°. Puncak tersebut tidak dihasilkan oleh zeolit dengan rasio Si/Al 2,53 dan 3,1. Zeolit Y rasio Si/Al 2,65 memiliki pola difraktogram yang lebih mirip dengan difraktogram zeolit Y standar jika dibandingkan dengan kedua zeolit Y lainnya. Hal ini didukung dengan data analisis XRF bahwa pada variasi rasio molar Si/Al 2,65 mengandung pengotor paling sedikit jika dibandingkan dengan dua sampel lainnya. Difraktogram sampel zeolit Y hasil sintesis pada variasi rasio Si/Al disajikan pada Gambar 3.



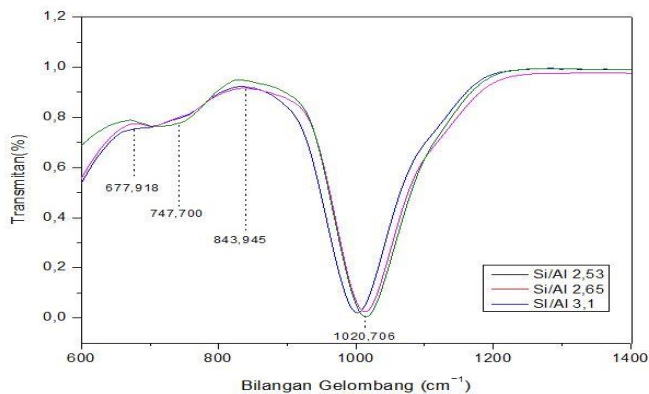
Gambar 3. Difraktogram Zeolit Y Hasil Sintesis Variasi Rasio Molar Si/Al

Berdasarkan difraktogram Gambar 3 zeolit Y hasil sintesis mengandung campuran zeolit P. Hal ini terjadi oleh pembentukan kerangka faujasit dapat mengalami keadaan metastabil. Zeolit Y akan bertransformasi menjadi zeolit P dipengaruhi oleh waktu aging dan kristalisasi [13, 14]. Sintesis zeolit Y dari bahan alam umumnya cenderung menghasilkan zeolit Y dan sedikit zeolit P yang diduga karena pengaruh logam-logam pengotor yang terdapat pada sumber silika dan aluminyanya. Penelitian Toto, *et al* [6] yang mensintesis zeolit Y dari abu terbang dan penelitian Zahro, *et al* [7] mensintesis zeolit Y dari abu ampas tebu sama-sama menghasilkan campuran zeolit Y dan P. Zeolit Y yang disintesis dari silika sekam padi dengan waktu aging lebih dari 24 jam ataupun waktu kristalisasi lebih dari sehari tidak menghasilkan zeolit Y murni [13]. Data ukuran kristal juga diperoleh dari analisa XRD yang dihitung dengan persamaan *Debye Scherrer*. Zeolit Y hasil sintesis mempunyai ukuran kristal pada kisaran 30,37 nm-159,78 nm. Thammavong [15] menyatakan bahwa ukuran kristal berbanding terbalik dengan harga FWHM. Semakin besar harga FWHM menunjukkan ukuran kristal yang semakin kecil.

Interpretasi IR Zeolit Y

Hasil analisa FTIR zeolit Y dengan variasi rasio molar Si/Al dapat dilihat pada Gambar 4. Identifikasi gugus fungsi yang terdapat pada zeolit Y hasil sintesis dan struktur kerangka aluminosilikat zeolit menggunakan FTIR menunjukkan zeolit hasil sintesis mempunyai daerah serapan infra merah sebagaimana zeolit pada umumnya yang memiliki daerah serapan

infra merah yang khas yaitu sekitar bilangan gelombang 1200-300 cm^{-1} [16]. Hal ini berkaitan dengan daerah yang memuat vibrasi fundamental kerangka tertrahedral ($\text{SiO}_4/\text{AlO}_4$) yang merupakan satuan-satuan pembangun kerangka zeolit [11].



Gambar 4. Spektra inframerah variasi rasio Si/Al

Berdasarkan Gambar 4 ketiga sampel zeolit Y hasil sintesis memiliki pola serapan yang sama. Daerah serapan sekitar 650 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur simetri Si-O-Si dan Al-O-Al, sedangkan daerah serapan sekitar 1000 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur asimetri Si-O-Al. Daerah serapan 650-500 cm^{-1} menunjukkan cincin ganda yang merupakan karakter kerangka zeolit pada jaringan eksternal antara lapisan zeolit satu dengan yang lainnya. Karakter spesifik cincin ganda pada zeolit Y hasil sintesis variasi molar Si/Al ditunjukkan pada daerah sekitar 677 cm^{-1} .

Luas Permukaan Zeolit Y

Data yang dapat diperoleh menggunakan *Gas Sorption Analyser* (GSA) dengan metode *Brunauer, Emmett and Teller* (BET). Persamaan BET hanya dapat digunakan untuk adsorpsi isoterm yang mempunyai nilai P/P_0 berkisar antara 0,05 sampai 0,3. Luas permukaan pada zeolit hasil sintesis dapat dilihat pada Tabel 6.

Tabel 6. Luas permukaan zeolit hasil sintesis

Sampel	Luas permukaan (m^2/g)
Zeolit Y rasio Si/Al 2,53	14,6388
Zeolit Y rasio Si/Al 2,65	13,7405
Zeolit Y rasio Si/Al 3,1	33,7874

Luas permukaan yang dihasilkan pada zeolit Y rasio Si/Al tergolong kecil, karena pada umumnya zeolit memiliki luas permukaan sekitar 160 m^2/g seperti penelitian Toto et al. [4] yang mensintesis zeolit Y dari abu terbang. Luas permukaan yang kecil dapat disebabkan oleh kehadiran kation berlebih, sehingga

menyumbat pori zeolit. Faktor tersebut didukung dengan data XRF dimana komposisi pada rasio Si/Al masih mengandung banyak kation. Kation yang dibutuhkan untuk menetralkan muatan negatif Al lebih banyak dari pada yang dibutuhkan. Kehadiran kation berlebih juga dapat menyebabkan terbentuknya garam dan adanya kation yang membentuk senyawa oksida.

Rasio Si/Al 3,1 memiliki luas permukaan yang paling besar jika dibandingkan dua sampel lainnya, hal ini dapat dipahami berdasarkan distribusi pori pada Gambar 5 dimana rasio Si/Al 3,1 mampu menyerap gas nitrogen lebih banyak. Luas permukaan menggambarkan permukaan aktif yang dapat terjadi kontak dengan reaktan dalam proses reaksi. Semakin besar luas permukaan yang dihasilkan maka jumlah molekul adsorbat yang teradsorpsi semakin meningkat. Luas permukaan merupakan luasan yang ditempati satu molekul adsorbat yang merupakan fungsi langsung dari luas permukaan sampel, sehingga dapat dikatakan bahwa luas permukaan merupakan jumlah pori disetiap satuan luas dari sampel dan luas permukaan spesifiknya merupakan luas permukaan per gram.

KESIMPULAN

Zeolit Y terbaik yang dihasilkan pada variasi keterisian autoklaf 90% berdasarkan hasil XRD. Pada keterisian 90% terbentuk puncak zeolit Y pada sudut $2\theta = 6,31^\circ$. Sementara berdasarkan hasil XRF keempat sampel zeolit masih mengandung logam-logam pengotor. Hasil analisis FTIR pada semua variasi keterisian autoklaf menunjukkan telah terbentuknya kerangka zeolit, dimana pada daerah serapan sekitar 820-650 cm^{-1} mewakili vibrasi ulur simetri O-Si-O dan O-Al-O. Zeolit Y rasio Si/Al 2,65 merupakan hasil terbaik dari sintesis yang telah dilakukan. Hal ini berdasarkan data analisis XRF dimana pada rasio Si/Al 2,65 mengandung pengotor lebih sedikit dibandingkan rasio Si/Al lainnya. Analisis XRD yang dihasilkan pada rasio Si/Al 2,65 muncul puncak pada posisi 2θ pada sudut $6,31^\circ$, 10° , dan 12° yang merupakan ciri khas dari zeolit Y. Data pendukung lainnya berupa FTIR juga menunjukkan terbentuknya kerangka dari zeolit, dan hasil analisis GSA dari zeolit Y memiliki luas permukaan yang rendah karena masih banyak mengandung kation pengotor.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] R. S. Mustopa, and D. D. Risanti, "Karakterisasi sifat fisis lumpur panas sidoarjo dengan aktivasi kimia dan fisika," *Jurnal Teknik PomITS*, vol. 2, no. 2, pp. 256-257, 2013.
- [2] A. A. Jalil, S. Triwahyono, S. H. Adam, N. D. Rahim, M. A. A. Aziz, N. H. H. Hairom, N. A. M. Razali, M. A. Z. Abidin, and M. K. A. Mohamadiah, "Adsorption of methyl orange from aqueous solution onto calcined lapindo volcanic mud," *Journal Article Science Direct*, vol. 181, pp. 755-762, 2010.
- [3] F. Stanislav, J. Marques, C. J. Tavares, Z. Lin, S. Mori, and N. Tsunoji, "UV-Light assisted synthesis of high silica faujasite-type zeolite," *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 336, p. 111858, 2022.
- [4] K. Hamid, M. Kazemini, S. Soltanali, and M. Rashidzadeh, "The effect of acid treatment and calcination on the modification of zeolite x in diesel fuel hydrodesulphurization," *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 100, no. 11, pp. 3357-3366, November 2022.
- [5] A. Khaleque, M. M. Alam, M. Hoque, S. Mondal, J. B. Haider, B. Xu, M.A.H. Johir, A. K. Karmakar, J. L. Zhou, M. B. Ahmed, and M. A. Moni, "Zeolite synthesis from low-cost materials and environmental applications: A review," *Environmental Advances*, vol. 2, p. 100019, 2020.
- [6] U. T. Toto, Sintesis dan karakterisasi zeolit y dari lumpur lapindo dengan variasi suhu hidrotermal menggunakan metode sol gel. *Skripsi*. Malang: Fakultas Sains dan Teknologi Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim Malang, 2016.
- [7] A. Zahro, S. Amalia, T. Kustono, and N. Aini, "Sintesis dan karakterisasi zeolit y dari ampas tebu variasi rasio molar $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$," *Alchemy*, vol. 3, no. 2, pp. 108-117, 2014.
- [8] E. B. G. Johnson, and S. E. Arshad, "Hydrothermally synthesized zeolites based on kaolinite: A review," *Applied Clay Science*, vol. 97-98, pp. 215-221, 2014.
- [9] D. Zhu, L. Wang, D. Fan, N. Yan, S. Huang, S. Xu, P. Guo, M. Yang, J. Zhang, and P. Tian, "A bottom-up strategy for the synthesis of highly siliceous faujasite-type zeolite," *Adv. Mater*, vol. 32, p. 2000272, 2020.
- [10] K. Byrappa, and M. Yoshimura. *Handbook of Hydrothermal Technology: A Technology For Crystal Growth and Materials Processing*. New Jersey USA: Noyes Publications, 2001.
- [11] Parra-Huertas, R. Adolfo, C. O. Calderón-Carvajal, J. A. Gómez-Cuaspud, and E. Vera-López, "Synthesis and characterization of faujasite-na from fly ash by the fusion-hydrothermal method." *Boletín de La Sociedad Española de Cerámica y Vidrio*, February, 2023.
- [12] M. Fathizadeh, and N. Ordou, "Controlling yield of nay zeolite synthesis by hydrothermal method," *Int. J. Ind. Chem*, vol. 2, no. 4, pp. 190-195, 2011.
- [13] S. Khabuanchalad, P. Khemthong, S. Prayoonpokarach, and J. Wittayakun. "Transformation of zeolite nay synthesized from rice husk silica to nap during hydrothermal synthesis," *Suranaree J. Sci. Technol*. vol. 15, pp. 225-231, January 2008.
- [14] G. Garcia, E. Cardenas, S. Cabrera, J. Hedlund, and J. Mouzon, "Synthesis of Zeolite Y from Diatomite as Silica Source. *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 219, pp. 29-37, January 2016.
- [15] M. Thammavong, Studies of Synthesis Kinetics and Particle Size of Zeolite X from Narathiwat Kaolin. *Tesis*. Thailand: Suranaree University of Technology, 2003.
- [16] D. W. Breck, *Zeolite Molecular Sieves*. New York: John Willey Interscience, 1974.