

# Pengaruh Rasio Mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ pada Sintesis Zeolit Y Secara Langsung dari Kaolin Bangka Belitung

Yurike Ika Cahyo dan Didik Prasetyoko

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

*e-mail*: didik.prasetyoko@chem.its.ac.id

**Abstrak**—Sintesis zeolit Y dari kaolin Bangka Belitung sebagai sumber silika dan alumina telah dipelajari. Zeolit Y disintesis menggunakan metode hidrotermal untuk mengetahui pengaruh rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $x$ ) = 4, 5, 6, dan 7. Pada penelitian ini, zeolit Y disintesis dengan komposisi rasio mol pada *seed gel*  $10,67\text{Na}_2\text{O}:x\text{SiO}_2:1\text{Al}_2\text{O}_3:180\text{H}_2\text{O}$  dan komposisi rasio mol pada *feedstock gel*  $4,3\text{Na}_2\text{O}:x\text{SiO}_2:1\text{Al}_2\text{O}_3:180\text{H}_2\text{O}$  menggunakan metode hidrotermal pada suhu  $105^\circ\text{C}$ . Hasil padatan dikarakterisasi menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD) dan spektroskopi inframerah (FTIR) yang menunjukkan bahwa zeolit Y mulai terbentuk pada sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4 dan waktu hidrotermal 12 jam. Berdasarkan hasil XRD yang diperoleh, sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4 dan 5 menghasilkan zeolit Y dengan intensitas partikel yang lebih tinggi dan fasa gismondin yang rendah.

**Kata Kunci**—Kaolin Bangka; abu sekam padi; sintesis ZSM-5; TPABr; TPAOH.

## I. PENDAHULUAN

Zeolit merupakan material yang telah banyak diteliti memiliki banyak kegunaan. Zeolit hingga saat ini banyak diaplikasikan sebagai katalis, adsorben, dan penukar ion. Zeolit adalah mineral kristal alumina silika terhidrat berpori yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi. Zeolit terbentuk oleh tetrahedral  $[\text{SiO}_4]^{4-}$  dan  $[\text{AlO}_4]^{5-}$  yang saling terhubung dengan adanya atom-atom oksigen sehingga membentuk kerangka tiga dimensi terbuka yang mengandung rongga-rongga berisi ion-ion logam. Logam ini biasanya adalah logam-logam alkali atau alkali tanah dan molekul air yang dapat bergerak bebas [1].

Salah satu zeolit yang paling umum digunakan adalah Zeolit Y. Zeolit Y merupakan salah satu jenis zeolit dengan struktur pori tiga dimensi dan padatan yang bersifat asam, sehingga dapat dimanfaatkan sebagai katalis, penukar ion, adsorben dan lain-lain.. Zeolit Y biasanya disintesis dengan sintesis uap, sintesis mikrowave, dan sintesis hidrotermal. Akan tetapi, metode hidrotermal merupakan metode sintesis yang paling menguntungkan dan banyak digunakan. Pada sintesis hidrotermal, zeolit dapat tersintesis dalam medium alkali dengan sumber silika dan alumina yang berbeda, misalnya aluminium hidroksida dan natrium aluminosilikat. Akan tetapi penggunaan bahan kimia murni sebagai sumber alumina dan silika relatif mahal, sehingga menyebabkan biaya produksi yang tinggi apabila diaplikasikan dalam skala industri, dan ketersediaannya yang juga terbatas. Oleh karena itu, diperlukan alternatif bahan baku (*raw material*) lain yang

murah dan tersedia melimpah di alam, khususnya di Indonesia.

Salah satunya sumberdaya alam Indonesia yang melimpah yaitu kaolin. Indonesia merupakan salah satu negara yang memiliki cadangan mineral tanah liat relatif besar, salah satunya adalah kaolin. Cadangan kaolin mencapai 1.068.377.264 ton [2] dan penambangan terbesar berada di Kepulauan Bangka Belitung [3]. Kaolin mengandung 10-95% mineral dan sebagian besar terdiri dari kaolinit (85-95%), aluminosilikat hidrat dengan komposisi  $2\text{H}_2\text{O}.\text{Al}_2\text{O}_3.2\text{SiO}_2$  [4]. Berdasarkan penelitian sebelumnya dinyatakan bahwa kaolin dapat digunakan sebagai sumber Al dan Si untuk sintesis zeolit tipe A, X, Y, P, 4A, NaA, KI, sodalit dan beberapa tipe zeolit lainnya [5].

Zeolit Y umumnya dipreparasi menggunakan metode hidrotermal dan teknik konvensional dengan proses kalsinasi kaolin ( $700\text{--}900^\circ\text{C}$ ) untuk mereduksi pengaruh bahan kimia lain, dan untuk transformasi menjadi material amorf (metakaolin) [6]. Hasil metakaolin ini kemudian digunakan untuk mensintesis zeolit dengan reaksi hidrotermal dalam media alkali [7]. Kalsinasi (yang biasa disebut aktivasi termal) tidak hanya menambah biaya finansial yang signifikan untuk proses sintesis zeolit Y dari kaolin, tetapi juga menimbulkan dampak negatif pada lingkungan seperti memerlukan konsumsi bahan bakar fosil dalam jumlah besar, sehingga menyebabkan gas rumah kaca dalam jumlah besar juga [8,9]. Oleh karena itu, penting dilakukan penelitian sintesis zeolit Y tanpa proses kalsinasi.

Salah satu faktor penting yang mempengaruhi sintesis zeolit Y dari kaolin tanpa kalsinasi dan perlu diteliti adalah rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Umumnya, zeolit Y dipreparasi dengan menggunakan material yang kaya kandungan silika untuk membentuk rasio silika-alumina yang relatif besar dan termasuk rentang rasio silika-alumina zeolit Y yaitu  $\text{Si}_2\text{O}_3:\text{Al}_2\text{O}_3 = 10$  [10]. Rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  ini memiliki pengaruh pada laju kristalisasi dan intensitas zeolit Y. Penelitian sebelumnya berhasil mensintesis zeolit Y menggunakan perbandingan  $\text{Si}_2\text{O}_3:\text{Al}_2\text{O}_3 = 5,1$  [11] dan rasio mol Si:Al = 10,0 [12] untuk sintesis zeolit Y. oleh karena itu, pada penelitian ini digunakan kaolin Bangka Belitung sebagai sumber silika dan alumina pada sintesis zeolit Y secara langsung (tanpa kalsinasi) dengan penggunaan waktu hidrotermal 12 jam serta variasi mol  $x\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $x$  yaitu 4, 5, 6, dan 7). Padatan hasil sintesis kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD) dan spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR).

II. URAIAN PENELITIAN

A. Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain peralatan gelas, neraca analisis, pengaduk magnetik (*magnetic stirrer*), botol plastik *high density polyethylene* (HDPE), oven, kertas indikator pH universal. Instrumen yang digunakan dalam penelitian ini adalah *X-Ray Diffraction* (XRD) PANalytical type Xpert Pro, *Fourier Transform Infrared* (FTIR) Shimadzu Instrument Spectrum One 8400S, SEM ZEISS EVO MA 10 dan EDX BRUKER 129 EV. Sedangkan bahan-bahan yang digunakan diantaranya kaolin Bangka Belitung (45.86% SiO<sub>2</sub> dan 22% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, wt% menggunakan XRF) sebagai sumber aluminium dan silika, natrium aluminat (NaAlO<sub>2</sub>) (53%, wt%) Ludox (30% SiO<sub>2</sub> dan 70% H<sub>2</sub>O, wt%) natrium hidroksida (NaOH ≥ 99%, Merck), dan aquademineralisasi.

B. Prosedur Kerja

B1. Sintesis Zeolit-Y

Proses pembuatan gel dalam sintesis zeolit Y terdiri dari 3 tahap awal yaitu pembuatan *seed gel*, *feedstock gel* dan *overall gel*. Sintesis *seed gel* dilakukan dengan perbandingan mol Na<sub>2</sub>O : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : SiO<sub>2</sub> : H<sub>2</sub>O = 10,67 : 1 : 10 : 180 dengan variasi komposisi mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (x) adalah 4, 5, 6, dan 7. Untuk efisiensi penggunaan bahan penelitian, maka komposisi mol dari setiap variasi disederhanakan menjadi 1/100 dari resep awal.

Pada pembuatan *seed gel*, aquademineralisasi ditambahkan NaOH (99% p.a) dan NaAlO<sub>2</sub> ke dalam botol plastik dan diaduk hingga homogen. Selanjutnya campuran ditambahkan Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 10 menit. Kemudian botol plastik HDPE ditutup dan dibiarkan pada suhu ruang selama 24 jam. Untuk perbandingan komposisi prekursor pada pembuatan *seed gel* dari setiap variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan perbandingan 1/100 resep awal dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Prekursor Pada *Seed Gel* 1/100 Resep Awal

Prekursor	Seed Gel			
	Massa (gram)			
	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 5	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 6	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 7
NaAlO <sub>2</sub>	1,92	1,92	1,92	1,92
Ludox	8,01	10,01	12,02	14,02
H <sub>2</sub> O	26,79	25,39	23,99	22,58
NaOH	7,48	7,48	7,48	7,48

Dengan menggunakan metode yang sama, dilakukan sintesis *feedstock gel* dengan perbandingan molar *feedstock gel* terhadap *seed gel* untuk membentuk *overall gel* adalah 18 : 1. Sintesis *feedstock gel* dilakukan dengan komposisi perbandingan mol 4.3Na<sub>2</sub>O:xSiO<sub>2</sub>:1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:180H<sub>2</sub>O, dengan variasi dari komposisi mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (x) adalah 4, 5, 6, dan 7. Untuk efisiensi penggunaan bahan penelitian, maka komposisi mol dari setiap variasi disederhanakan menjadi 1/100 dari resep awal. *Feedstock gel* kemudian ditutup botol plastik hingga dilakukan penambahan *seed gel*. Untuk perbandingan komposisi prekursor pada pembuatan *seed gel* dari setiap variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan perbandingan 1/100 dari resep awal dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2. Komposisi Prekursor Pada *Seed Gel* dan *Feedstock Gel* 1/100 Resep Awal

Prekursor	Feedstock Gel			
	Massa (gram)			
	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 5	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 6	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 7
Kaolin	7,48	7,48	7,48	7,48
Ludox	1,49	4,73	7,96	11,19
H <sub>2</sub> O	51,22	48,96	46,69	44,43
NaOH	5,55	5,55	5,55	5,55

*Seed gel* ditambahkan ke dalam *feedstock gel* secara perlahan dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 600 rpm selama 20 menit. Gel yang terbentuk selanjutnya dimasukkan kedalam autoklaf untuk proses kristalisasi dan dilakukan pemeraman pada suhu ruang selama 24 jam. Selanjutnya dimasukkan kedalam oven untuk proses hidrotermal pada suhu 100°C selama 7 jam. Padatan zeolit Y yang dihasilkan kemudian disaring menggunakan pompa vakum dan dilanjutkan proses pencucian menggunakan air deionisasi hingga pH kurang dari 9. Selanjutnya dilakukan pengeringan pada suhu 110°C selama 12 jam [12].

Setelah pemisahan, pencucian, dan pengeringan, padatan didinginkan kemudian ditimbang untuk selanjutnya dikarakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD), *Fourier Transform Infrared* (FTIR), dan *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray* (SEM-EDX).

C. Karakterisasi

Karakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) digunakan untuk mengetahui struktur, komposisi dan kristalinitas sampel, *Fourier Transform Infrared* (FTIR) digunakan untuk mengidentifikasi vibrasi ikatan, dan *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray* (SEM-EDX) untuk mengetahui morfologi dari sampel yang telah disintesis dan digunakan untuk mengetahui kandungan unsur yang terdapat pada padatan hasil sintesis.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

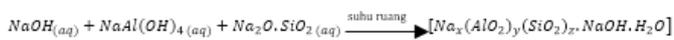
A. Sintesis Zeolit Y

Zeolit Y disintesis dengan menggunakan metode hidrotermal dan perbandingan mol pada *seed gel* adalah 10,67Na<sub>2</sub>O:xSiO<sub>2</sub>:1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:180H<sub>2</sub>O dan *feedstock gel* adalah 4.3Na<sub>2</sub>O:xSiO<sub>2</sub>:1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:180H<sub>2</sub>O, dimana x merupakan variasi komposisi mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yaitu 4, 5, 6, dan 7.

Sintesis zeolit Y diawali dari pembuatan *seed* dan *feedstock gel*. *Seed gel* merupakan gel yang berfungsi membentuk inti kristal zeolit, sedangkan *feedstock gel* merupakan gel yang berfungsi memperbanyak dan menguatkan inti kristal yang terbentuk dari *seed gel* [13]. Keduanya memiliki kesamaan bentuk berupa gel berwarna putih susu yang mengandung padatan amorf silika dan alumina. Sintesis *seed gel* melalui proses *aging* selama 24 jam pada suhu ruang untuk pembentukan inti kristal zeolit [14], sedangkan pada sintesis *feedstock* tanpa perlakuan *aging*. Selain itu, pada sintesis *seed gel* dan *feedstock gel* juga melibatkan penambahan natrium hidroksida (NaOH) yang berperan sebagai *mineralising agent* [15]. *Seed gel* kemudian ditambahkan ke dalam *feedstock gel* untuk membentuk *overall gel*. Sesuai prosedur yang dilaporkan [12], dimana rasio optimum penambahan *feedstock gel* terhadap *seed gel* sebesar 18 : 1. Perbandingan antara *feedstock gel* dan *seed gel* sangat mempengaruhi keberhasilan sintesis zeolit. Apabila

penambahan *feedstock gel* dalam jumlah yang besar terhadap *seed gel* pada, maka akan terjadi penurunan kristalinitas dari zeolit Y. Hal tersebut disebabkan oleh adanya reaksi antara *feedstock gel* dan *seed gel* yang berlangsung lebih cepat, sehingga kristal zeolit yang terbentuk menjadi tidak teratur.

Pemeraman dilakukan pada suhu ruang untuk memaksimalkan proses nukleasi sehingga terjadi pemutusan ikatan pada kaolin yang dibuktikan dengan berkurangnya kristalinitas kaolin [16]. Kemudian dilanjutkan dengan proses hidrotermal, dimana dalam proses ini terjadi reaksi antara material padatan dengan pelarut air pada tekanan tinggi dalam wadah tertutup [17]. Proses hidrotermal ini berfungsi untuk menumbuhkan inti kristal. Pada tahap ini terjadi pemutusan ikatan pada prekursor yaitu ikatan Si-O dan Al-O sehingga terbentuk ikatan baru Si-O-Al akibat adanya agen mineralisasi [17]. Saat interaksi antara garam silikat dan aluminat larut dalam air inilah terjadi reaksi hidrolisis sehingga meningkatkan pH campuran. Interaksi antara garam silikat dan aluminat ini merupakan tahap awal pembentukan gel (gelasi). Reaksi yang terjadi seperti yang ditunjukkan dalam persamaan berikut [18,14].

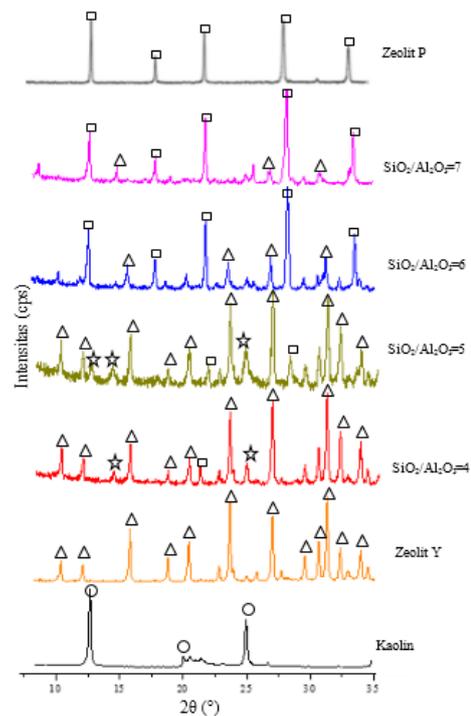


Selanjutnya *seed gel* dan *feedstock gel* dicampurkan dan diaduk selama 20 menit dengan kecepatan 600 rpm untuk membentuk *overall gel*. Setelah diaduk, campuran diangkat dan tanpa membuka botol, langsung dipanaskan (hidrotermal) kedalam oven dengan suhu 105 °C selama 12 jam. Setelah itu sampel dikeluarkan dari oven dan didinginkan (dengan merendam botol didalam air dengan keadaan tutup botol sedikit terbuka dan jangan sampai air untuk perendaman masuk kedalam botol). Kemudian endapan disaring dan dicuci dengan menggunakan aquademineralisasi hingga pH-nya netral ( $\pm 7$ ). Sampel dikeringkan selama 24 jam pada suhu 105 °C didalam oven dan siap dikarakterisasi.

**B. Karakterisasi Zeolit Y**

**B.1 X-Ray Diffraction (XRD)**

Karakterisasi XRD dilakukan untuk mengetahui fasa kristal padatan hasil sintesis. Pola difraktogram diamati pada  $2\theta$  sebesar 8-35°. Berdasarkan pola difraktogram yang diperoleh dapat dilakukan identifikasi fasa kristal dan intensitas (I) dari sampel dengan variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Berdasarkan puncak karakteristik dari JCPDS No. 39-1380 bahwa zeolit Y muncul pada  $2\theta$  sekitar 15,5; 23,5; 26,9; dan 31,2° (ditandai dengan simbol  $\Delta$ ). Berdasarkan *Collection of Simulated XRD Powder Patterns for Zeolites*, puncak karakteristik dari fasa gismondine (zeolit P) biasanya ditemukan pada  $2\theta$  sekitar 12,15; 18,04; 20,82; 28,02; dan 32,66° (ditandai dengan simbol  $\square$ ), sedangkan fasa kaolinit memiliki puncak karakteristik pada  $2\theta$  sekitar 12,3; 20,1; dan 24,8° (ditandai dengan simbol  $\circ$ ). Hasil difraktogram XRD ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Pola Difraktogram Sinar-X Sampel Kaolin dan Sampel Variasi Rasio SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Hasil puncak-puncak spesifik difraktogram sampel dengan variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dapat dilihat pada Tabel 3. yang menunjukkan bahwa pada sampel variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 4 dan 5 muncul spesifik puncak karakteristik zeolit Y (faujasit), sebagian muncul puncak pengotor seperti fasa gismondin (zeolit P) dan puncak tidak teridentifikasi (ditandai dengan simbol  $\star$ ), sedangkan pada sampel variasi rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 6 dan 7 muncul spesifik puncak karakteristik gismondin (zeolit P), sebagian muncul puncak pengotor seperti fasa zeolit Y (faujasit) dan kaolinit.

Sampel dengan rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sama dengan 4 pada waktu hidrotermal 12 jam telah membentuk puncak karakteristik zeolit Y pada  $2\theta$  yaitu 10,02; 11,74; 15,43; 18,39; 20,06; 24,63; 26,63; dan 30,91; 32,59; 34,14°. Akan tetapi pada sampel ini juga masih terdapat puncak fasa pengotor gismondin pada  $2\theta$  sekitar 20,94° dan terdapat juga fasa yang tidak teridentifikasi yaitu pada  $2\theta$  sekitar 15,43 dan 26,63°. Tidak munculnya puncak kaolin menandakan bahwa kaolin sudah larut sempurna.

Pada sampel dengan rasio mol SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sama dengan 5 pada waktu hidrotermal 12 jam terbentuk fasa kristalin faujasit pada  $2\theta$  yaitu 9,97; 11,72; 15,42; 18,39; 20,07; 24,54; 26,66; 30,96; 33,62; dan 34,19°. Selain itu pada sampel ini masih terdapat fasa yang tidak teridentifikasi yaitu pada  $2\theta$  sekitar 15,42; 12,38 dan 24,54° dan juga terdapat puncak pengotor fasa gismondin pada  $2\theta$  sekitar 22,47 dan 28,02°. Munculnya puncak kaolin menandakan kaolin belum larut sempurna sehingga menyebabkan sampel tidak murni.

Tabel 3. Fasa Kristalin pada Waktu Hidrotermal 12 jam dan Variasi SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang Berbeda

No.	Variasi Rasio SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fasa Utama	Fasa Pengotor
1	4	Faujasit	Gismondin dan Tidak Teridentifikasi
2	5	Faujasit	Gismondin dan Tidak Teridentifikasi
3	6	Gismondin	Faujasit
4	7	Gismondin	Faujasit

Hasil difraktogram XRD sampel zeolit Y dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 6 dan 7 cenderung sama dengan hasil difraktogram XRD sampel zeolit P. Hal ini ditandai dengan terbentuknya lebih banyak puncak khas zeolit P pada  $2\theta$  yaitu  $12,50; 17,71; 21,70; 28,13; \text{ dan } 33,41^\circ$  untuk sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 6 dan munculnya puncak khas zeolit P pada  $2\theta$  yaitu  $12,47; 17,70; 21,67; 28,13; \text{ dan } 33,40^\circ$  untuk sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 7. Selain itu, pada sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 6 juga muncul puncak fasa faujasit pada  $2\theta$  yaitu  $15,55; 24,96; 26,82; \text{ dan } 31,13^\circ$ , sedangkan pada sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 7 juga muncul puncak fasa faujasit pada  $2\theta$  yaitu  $14,64; 26,86; \text{ dan } 30,77^\circ$ .

Berdasarkan pola dan bentuk puncak difraktogram XRD, dapat disimpulkan bahwa sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  adalah 4 dan 5 merupakan kristal zeolit Y yang belum murni karena masih ditandai dengan munculnya puncak pengotor zeolit P dan kaolinit, sedangkan sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  adalah 6 dan 7 merupakan kristal zeolit P yang belum murni karena masih ditandai dengan munculnya puncak pengotor zeolit Y. Berdasarkan data JCPDS No. 39-1380, sampel tergolong zeolit Y apabila memiliki puncak-puncak khas pada  $2\theta$  sekitar  $11,8; 15,5; 18,6; 20,2; 23,5; 26,9; 29,4; 30,5; 31,2; 32,3; 33,9; 34,5; 37,6; \text{ dan } 41,1^\circ$ . Kristal zeolit Y memiliki salah satu puncak tertinggi yang muncul pada  $2\theta = \sim 31^\circ$  yang menandakan tingkat keteraturan kristal yang tinggi [19]. Semakin tinggi rasio Si/Al, maka puncak difraktogram cenderung semakin bergeser ke arah  $2\theta$  yang lebih besar. Puncak-puncak spesifik yang dihasilkan oleh sampel dengan variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  dapat dilihat pada Tabel 4.

Berdasarkan data JCPDS No. 39-1380 yang menunjukkan bahwa salah satu puncak tertinggi dari kristal zeolit NaY muncul pada  $2\theta = \sim 31^\circ$ , maka pengukuran intensitas dilakukan pada  $2\theta$  sekitar  $30-31^\circ$  dan didapatkan hasil pada Tabel 5. Tabel tersebut menunjukkan sampel dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  sama dengan 4 memiliki intensitas puncak tertinggi pada  $2\theta$  yaitu  $30,91^\circ$  sebesar  $58,14$ .

Tabel 4. Perbandingan Hasil Puncak Spesifik pada Difraktogram Sampel dengan Variasi Rasio Mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4, 5, 6, 7

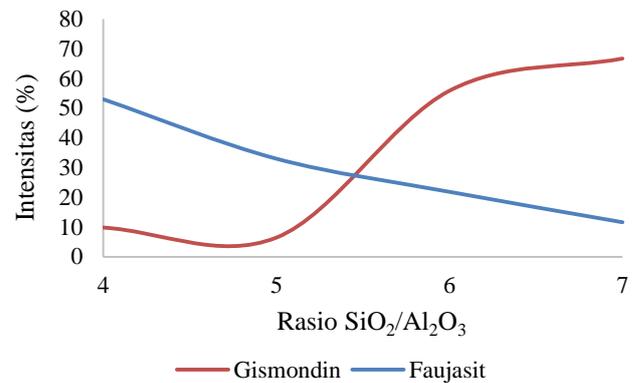
Variasi $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	$2\theta$ ( $^\circ$ )				
4	11,74	15,43	24,63	26,63	30,91
5	11,72	15,42	24,54	26,66	30,96
6	11,83	15,55	24,96	26,82	31,13
7	12,47	14,64	25,47	26,67	33,40

Penelitian sebelumnya menjelaskan bahwa alkalinitas adalah perbandingan OH-/Si sehingga apabila semakin tinggi rasio Si, maka alkalinitasnya akan semakin rendah [20]. Jika alkalinitas semakin rendah, maka kelarutan sumber silika dan alumina akan lebih rendah dan tingkat polimerisasi anion polisilikat dan aluminat meningkat sehingga semakin rendah alkalinitas akan memperpanjang periode induksi dan waktu nukleasi serta memperlambat kristalisasi. Hal ini menyebabkan intensitas pada  $2\theta = \sim 31^\circ$  (salah satu puncak khas dan tertinggi dari zeolit Y berdasarkan data JCPDS No. 39-1380) semakin menurun seiring bertambahnya jumlah rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Tabel 5. Perbandingan Hasil Nilai Intensitas pada Difraktogram Sampel dengan Variasi Rasio Mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4, 5, 6, 7

Variasi Rasio Mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	$2\theta$ ( $^\circ$ )	Intensitas (I)
4	30,91	58,14
5	30,96	32,67
6	31,12	25,40
7	30,77	11,19

Hubungan antara variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  dengan intensitas pembentukan fasa faujasit dan fasa gismondin digambarkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Hubungan Variasi Rasio Mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  dengan Intensitas Pembentukan Fasa Faujasit dan Fasa Gismondin

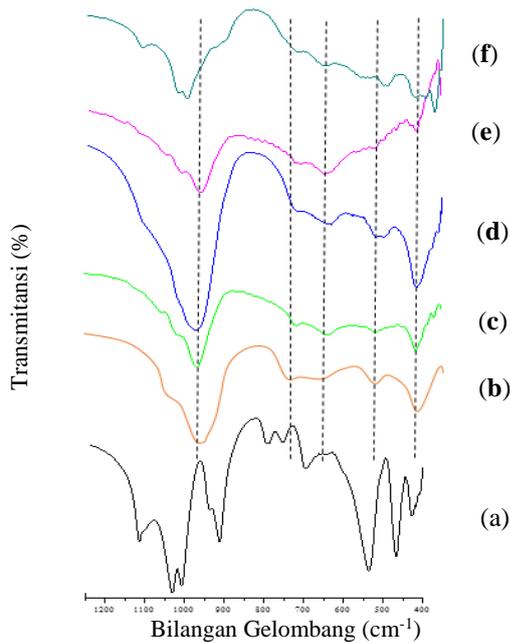
Pembentukan fasa faujasit cenderung menurun intensitasnya seiring bertambahnya rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ , sedangkan pembentukan fasa gismondin cenderung meningkat intensitasnya seiring bertambahnya rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

**B.2 Spektroskopi Fourier Transform Inframerah (FTIR)**

Karakterisasi spektra FTIR yang menggunakan instrumen spektroskopi inframerah Shimadzu *Instrument Spectrum One 8400S* dilakukan untuk mengidentifikasi struktur dan gugus fungsi yang terkandung dalam sampel hasil sintesis. Spektra diukur pada bilangan gelombang  $1250-400 \text{ cm}^{-1}$  untuk setiap variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  pada kondisi waktu hidrotermal 12 jam. Spektra FTIR dari sampel dengan variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  ditunjukkan oleh Gambar 3.

Pada karakterisasi inframerah ini, terdapat spektra inframerah dari kaolin yang muncul pada serapan bilangan gelombang  $470, 540, 700, 754, 912, 931, \text{ dan } 1034 \text{ cm}^{-1}$ . Puncak kaolin pada bilangan gelombang sekitar  $700 \text{ dan } 754 \text{ cm}^{-1}$  tidak muncul dalam spektra sampel dengan variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ , sehingga dapat disimpulkan bahwa struktur kaolin telah larut. Spektra inframerah sampel dengan variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  pada Gambar 5. (b-f) menunjukkan beberapa puncak serapan spesifik yaitu sekitar  $745-737; 1007-974; 596-542; 467-459; 421-397 \text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi eksternal asimetri pada sampel sintesis dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4, 5, 6, dan 7 masing-masing terjadi pada bilangan gelombang  $743 \text{ dan } 1055; 743; 737; 745, 1026, \text{ dan } 1111 \text{ cm}^{-1}$ . Selain itu, vibrasi ulur eksternal simetri pada sampel sintesis dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4, 5, 6, dan 7 masing-masing terjadi pada bilangan gelombang  $974; 984; 976 \text{ dan } 1018; 1007 \text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi eksternal cincin ganda D4R atau D6R pada sampel sintesis dengan rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  4, 5, 6, dan 7 masing-masing terjadi pada bilangan gelombang  $557; 552; 550; 542 \text{ dan } 596 \text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi

internal  $TO_4$  tetrahedral pada sampel sintesis dengan rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, 5, 6, dan 7 masing-masing terjadi pada bilangan gelombang 461; 463; 459; 467  $cm^{-1}$ .



Gambar 3. Spektra Inframerah Pada Sampel (a) Kaolin, (b) Zeolit Y, (c) Zeolit Y Rasio Mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, (d) 5, (e) 6, (f) 7

Semua pita serapan yang disebabkan oleh vibrasi internal dalam kerangka adalah sensitif terhadap struktur dan komposisi kerangka. Menurut data daerah serapan zeolite pada penelitian sebelumnya [21] menunjukkan bahwa pada Gambar 5. (b-f) ditemukan serapan pada daerah bilangan gelombang 500-650  $cm^{-1}$ . Oleh karena itu, seperti yang telah dijelaskan pada pembahasan sebelumnya bahwa didalam zeolit Y terdapat vibrasi cincin ganda. Dengan adanya vibrasi cincin ganda (D4R atau D6R) pada setiap sampel dengan variasi rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  menandakan bahwa sampel yang disintesis pada penelitian ini adalah zeolit Y [22].

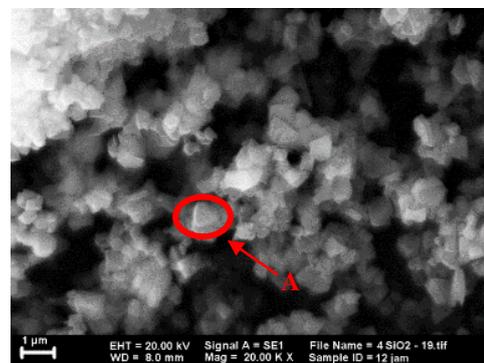
Hasil spektroskopi inframerah untuk sampel dengan variasi rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, 5, 6, dan 7 pada waktu hidrotermal 12 jam (Gambar 4.7 c, d, dan e) sudah tidak menunjukkan puncak serapan pada sekitar bilangan gelombang yang menjadi karakteristik dari kaolin, sehingga dapat dikatakan kaolin sudah bereaksi sempurna. Berdasarkan penjelasan tersebut dapat disimpulkan bahwa fasa zeolit Y (ditandai dengan garis putus-putus) telah terbentuk pada kondisi sintesis yaitu rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, 5, 6, dan 7 dengan waktu hidrotermal 12 jam.

**B.2 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)**

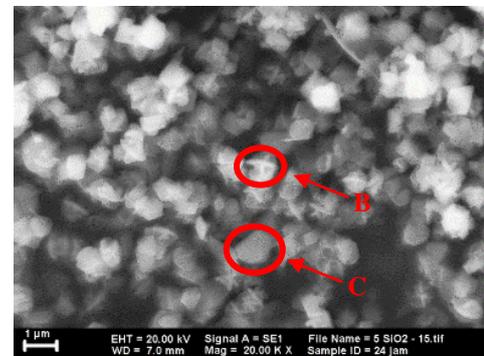
Pengamatan dengan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) bertujuan untuk mengetahui morfologi dan ukuran kristal sampel, sedangkan untuk mengetahui unsur-unsur yang terdapat dalam sampel dapat dianalisis menggunakan *Electron Dispersive X-ray* (EDX). Hasil karakterisasi XRD dan FTIR sampel dengan variasi rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, 5, dan 6 menunjukkan pola difraktogram dan pola spektra inframerah yang seragam dengan zeolit Y. Oleh karena itu, karakterisasi SEM-EDX dilakukan pada sampel zeolit Y rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4, 5, dan 6.

Gambar 6. menunjukkan bahwa kristal sampel dengan rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4 menunjukkan bahwa hampir semua

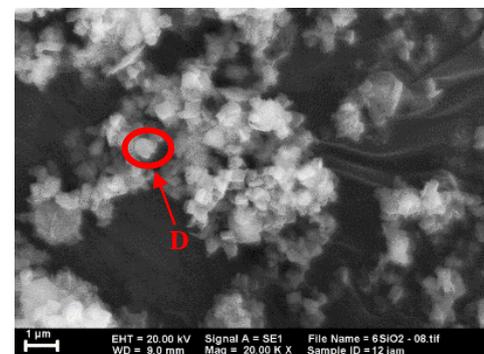
partikel sampel memiliki morfologi bentuk kristal yang seragam dan teratur yang berbentuk kotak menggumpal atau saling melekat dengan sudut yang lebih tajam (seperti yang ditunjukkan oleh panah A pada Gambar 6) dengan ukuran partikel pada sampel ini sekitar 1  $\mu m$ . Pada kristal sampel dengan rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  5 memiliki dua bentuk morfologi kristal yaitu kotak dan terdapat bentuk mengerucut dengan puncak berbentuk X yang masing-masing menggumpal (seperti yang ditunjukkan oleh panah B dan C pada Gambar 6) dengan ukuran partikel pada sampel ini sekitar 1,2  $\mu m$  menunjukkan bahwa hampir semua partikel sampel memiliki morfologi bentuk kristal yang seragam dan teratur yang berbentuk kotak menggumpal atau saling melekat dengan sudut yang kurang tajam dibandingkan sampel dengan rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  4 (seperti yang ditunjukkan oleh panah D pada Gambar 6) dengan ukuran partikel pada sampel ini sekitar 0,6  $\mu m$ . Dapat disimpulkan bahwa ukuran kristal zeolit Y pada sampel variasi rasio mol  $SiO_2/Al_2O_3$  memiliki ukuran partikel 0,6-1,2  $\mu m$ .



(a)



(b)



(c)

Gambar 6. Sampel Zeolit Y Rasio Mol  $SiO_2/Al_2O_3$  (a) 4, (b) 5, (c) 6

Berdasarkan hasil SEM dapat diperkirakan ukuran partikel kristal zeolit Y yang didapatkan. Seperti yang telah dilaporkan oleh peneliti sebelumnya [11] yang membagi zeolit menurut rasio  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  bahwa pada dasarnya zeolit Y merupakan zeolit bersilika tinggi dengan rasio  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 5,1$  dan penelitian sebelumnya [12] juga melaporkan bahwa zeolit Y merupakan zeolit bersilika tinggi dengan rasio  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 10$ . Oleh karena itu, dilakukan analisa menggunakan *Electronic Dispersive X-ray* (EDX) untuk mengetahui apakah sampel zeolit Y yang terbentuk adalah bersilika tinggi.

Tabel 6. menunjukkan hasil karakterisasi dari EDX yang menunjukkan komposisi unsur yang terdapat dalam sampel variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Tabel 6. Perhitungan Komposisi Rasio Aluminosilikat dan Komposisi Penyusun Lain Dalam Kristal

Rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Gel	% Atom				Rasio Si/Al
	Si	Al	O	Na	
4	7,81	9,21	72,44	10,53	0,85
5	3,86	4,41	86,15	5,58	0,88
6	3,24	3,21	88,91	4,64	1,01

Berdasarkan perhitungan komposisi rasio Si/Al diatas dapat diketahui bahwa komposisi rasio  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  dalam sampel hasil sintesis adalah meningkat seiring dengan bertambah tingginya variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Oleh karena itu, sampel hasil sintesis termasuk dalam golongan zeolit bersilika tinggi (kaya Si). Namun, berdasarkan hasil perhitungan, perbandingan  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  dalam sampel hasil sintesis diketahui lebih rendah daripada perbandingan Si/Al yang digunakan pada campuran sintesis. Hal ini dapat disebabkan karena dalam pembentukan struktur zeolit Y, tidak seluruh aluminium terpakai dalam pembentukan strukturnya.

#### IV. KESIMPULAN

Sintesis zeolit Y dari kaolin Bangka Belitung dapat dilakukan dengan metode hidrotermal. Berdasarkan hasil karakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) dan *Fourier Transform Infrared* (FTIR), bertambahnya rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  menyebabkan menurunnya intensitas fasa faujasit dan meningkatnya fasa gismondin. Selain itu, berdasarkan hasil *Scanning Electron Microscopy* (SEM) kristal zeolit Y pada masing-masing sampel variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  memiliki ukuran partikel 0,6-1,2  $\mu\text{m}$ , sedangkan berdasarkan hasil perhitungan komposisi rasio Si/Al dari *Energy Dispersive X-ray* (EDX) menunjukkan bahwa komposisi rasio Si/Al dalam sampel hasil sintesis meningkat seiring dengan bertambahnya variasi rasio mol  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Oleh karena itu, sampel hasil sintesis termasuk dalam golongan zeolit bersilika tinggi (kaya Si).

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Bapak Didik Prasetyoko selaku dosen pembimbing penulis.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] Cheetam, D.A., (1992). *Solid State Compound*. Oxford University Press, 234-237.
- [2] ESDM. (2012). *Pusat Sumber Data Geologi*. Kementerian Energi dan Sumber Daya Mineral Indonesia.

- [3] Murray, H. (2007). *Applied Clay Mineralogy (Vol. 17)*. Netherland: Elsevier.
- [4] Grim, R. E. (1968). *Clay mineralogy, 2nd ed*. New York: Mc Graw-Hill.
- [5] Dudzik, Z., & Kowalak, S. (1974). Preparation of zeolites of faujasite type from kaolin. *Przemys I Chemiczny*, 616-618.
- [6] Costa, E., Lucas, A. D., Uguina, M. A., & Ruiz, J. C. (1988). Synthesis of 4A Zeolite from Calcined Kaolins for Use in Detergents. *Ind. Eng. Chem. Res*, 1291-1296.
- [7] Breck, D. W. (1984). *Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry, and Use*. New York: John Wiley & Sons Inc.
- [8] Melo, C. R., Riella, H. G., Kuhnen, N. C., Angioletto, E., Melo, A. R., Bernardin, A. M., Silva, L. d. (2012). Synthesis of 4A zeolites from kaolin for obtaining 5A zeolites through ionic exchange for adsorption of arsenic. *Materials Science and Engineering B*, 345-349.
- [9] Rios, C. A., Williams, C. D., & Fullen, M. A. (2009). Nucleation and growth history of zeolite LTA synthesized from kaolinite by two different methods. *Applied Clay Science*, 446-454.
- [10] Mohamed, R., Mkhald, I., & Barakat, M. A. (2012). Rice husk ash as a renewable source for the production of zeolite NaY and its characterization. *Arabian Journal of Chemistry*, 48-53.
- [11] Chen, L., K.Singh, R. and Webley, P., (2007), "Synthesis, characterization and hydrogen properties of microporous carbons templated by cation exchanged forms of zeolite Y with propylene and butylene as carbon precursors", *Journal of Microporous and Mesoporous Materials*, vol 102, page 159 – 170.
- [12] Robson, H., & Lillerud, K. (2001). *Verified Syntheses of zeolitic materials second revised edition*. Elsevier Science.
- [13] Kayadoe, V. (2013). Sintesis dan Karakterisasi Karbon Tertemplate Zeolit NaY dengan Prekursor Sukrosa Sebagai Material Penyimpan Hidrogen. *Tesis Program Magister Kimia-FMIPA ITS*.
- [14] Ojha, K., Pradhan, N.C. and Amarnath, S., (2004), "Zeolite from Fly Ash: synthesis and characterization", *Journal of Bull Mater*, vol 27, page 555 – 564.
- [15] Foletto, E.L., Castoldi, M.M., Oliveira, L.H., Hoffmann, R., and Jahn, S.L., (2009) , "Conversion of Rice Husk Into Zeolitic Materials", vol.39, page 75-78.
- [16] Rustam. (2013). *Direct Synthesis of ZSM-5 from Kaolin the Presence of TPABr and TPAOH as Organic Templates*. Thesis Kimia ITS, Surabaya.
- [17] Byrappa, K., & Yoshimura, M. (2001). *Handbook of Hydrothermal Technology: A Technology For Crystal Growth and Materials Processing*. New Jersey USA: Noyes Publications.
- [18] Manurung, T.W., Sunardi dan Irawa, U., (2011), "Kajian Pengaruh Konsentrasi NaOH Terhadap Karakter Zeolit Sintetik dari Kaolin Lokal Kalimantan Selatan", *Sains dan Terapan Kimia*, 5, 76-83.
- [19] Ma, Z., Kyotani, T. and Tomita, A., "Synthesis methods for preparing microporous carbons with a structural regularity of zeolite Y". *Carbon* 2001, 40, 2367-74.
- [20] Xu, R., Pang, W., Yu, J., Qisheng, H., & Chen, J. (2007). *Chemistry of Zeolites and Related Porous Materials: Synthesis and Structure*. Singapore, Asia: John Wiley and Sons.
- [21] Flanigen, E.M., Khatami, H., Szymanski, H., 1971. "Infrared Structural Studies of Zeolites Framework". Union Carbide Corp, Linde Division laboratory, New York.
- [22] Breck, D. (1974). *Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry and Uses*. New York: John Wiley.