

PENGARUH VARIASI MOL H₂O TERHADAP KRISTALINITAS ZEOLIT ZSM-5

Ana Hidayati Mukaromah¹⁾³⁾, Muh. Amin³⁾, Buchari¹⁾, Rino R. Mukti²⁾,
dan Muhammad Ali Zulfikar¹⁾

¹⁾Kimia Analitik ITB ²⁾ Kimia Anorganik dan Kimia Fisik ITB ³⁾ Universitas Muhammadiyah Semarang
Jl. Kdungmundu Raya 18 Semarang anahidamuka@gmail.com

ABSTRAK

Zeolit adalah suatu padatan kristalin berpori dengan tiga dimensi yang strukturnya mengandung aluminosilikat, (SiO₄)⁴⁻ dan (AlO₄)⁵⁻ untuk menurunkan konsentrasi ion logam berat. Sintesis zeolit ZSM-5 dengan proses hidrotermal mempunyai kelemahan yaitu memerlukan suhu tinggi, biaya produksi besar, dan sintesis dalam skala besar sulit dilakukan. Oleh karena itu perlu dilakukan sintesis zeolit ZSM-5 pada suhu rendah. Tujuan penelitian ini adalah mensintesis zeolit ZSM-5 dengan variasi mol H₂O pada suhu rendah (90°C) sehingga diperoleh precursor larutan encer yang dapat diaplikasikan pada sintesis membran ZSM-5 dengan metoda elektrodeposisi dan mengkarakterisasi produk ZSM-5 dengan XRD. Sintesis zeolit ZSM-5 pada suhu rendah adalah dengan mencampur 0,027 mol NaAlO₂; 0,184 mol NaOH 50% b/b; 0,093 mol TPABr; 2,8 mol Ludox HS-40, dan 21,8 mol H₂O. Selanjutnya dilakukan pengocokan dengan kecepatan 900 rpm selama 30 menit, kemudian dimasukkan ke dalam oven 90°C selama 4 hari. Padatan putih yang terbentuk dicuci dengan akuades dan dipanaskan pada suhu 60°C selama 3 jam, serta dikalsinasi pada suhu 550°C selama 8 jam. Sintesis ZSM-5 dilakukan variasi mol H₂O dan zeolit ZSM-5 yang dihasilkan dikarakterisasi dengan XRD. Hasil penelitian adalah sintesis zeolit ZSM-5 dengan 174,4 mol H₂O (8x) berbentuk larutan precursor yang encer dan mempunyai kristalinitas 68,69 % yang dapat diaplikasikan pada sintesis membran ZSM-5 dengan metoda elektrodeposisi.

Kata kunci: Zeolit ZSM-5, variasi mol H₂O, suhu rendah (90°C), dan metoda elektrodeposisi.

EFFECTIVENESS OF The Mol H₂O VARIATION to CRISTALINITY ZSM-5

Ana Hidayati Mukaromah¹⁾³⁾, Muhammad.Amin³⁾, Buchori¹⁾, Rino R. Mukti²⁾,
and Muhammad Ali Zulfikar¹⁾

¹⁾Division of Analytical Chemistry ²⁾ Division of Anorganic and Physical Chemistry
Technology Bandung Institute, Indonesia, ³⁾ Lecture of Muhammadiyah Semarang University
Kedungmundu Raya 18 Semarang anahidamuka@gmail.com

Zeolite is a crystalline solid with a three-dimensional porous structure containing aluminosilicate, (SiO₄)⁴⁻ and (AlO₄)⁵⁻ to decrease the concentration of heavy metal ions. Synthesis of zeolite ZSM-5 by hydrothermal process has the disadvantage of requiring high temperature, large production costs, and the synthesis of a large scale is difficult. Therefore it is necessary for the synthesis of zeolite ZSM-5 at low temperatures. The purpose of this research are synthesis of ZSM-5 with variations mol H₂O at low temperature in order to obtain an aqueous solution of precursors that can be applied to the synthesis of ZSM-5 membranes by electrodeposition method and characterize the zeolite ZSM-5 product with XRD. Synthesis ZSM-5 is mixing 0.027 mol NaAlO₂; 0.184 mol NaOH 50% w/w; 0.093 mol TPABr; 2.8 mol Ludox HS-40 and 21.8 mol H₂O. Furthermore is stirred at 900 rpm for 30 minutes, then put into an oven temperature of 90 ° C for 4 days. The white solid that formed was washed with distilled water and heated at 60 ° C for 3 hours, and calcined at a 550 ° C for 8 hours. Synthesis of ZSM-5 performed variations mol H₂O and ZSM-5 produced were characterized by XRD. The result of the research is ZSM-5 synthesized with 174.4 moles of H₂O (8x) form a dilute precursor solution and based on the data of XRD crystallinity of zeolites 68.69% and can be applied to the synthesis of ZSM-5 membranes by electrodeposition method.

Keywords: zeolite ZSM-5, the variation mol H₂O, and low temperature (90 °C)

PENDAHULUAN

Zeolit adalah suatu padatan kristalin berpori dengan tiga dimensi yang strukturnya mengandung aluminosilikat, terbangun dari $(\text{SiO}_4)^{4-}$ dan $(\text{AlO}_4)^{5-}$ membentuk struktur bermuatan negatif dan berongga terbuka/berpori. Muatan negatif pada kerangka zeolit dinetralkan oleh kation yang terikat lemah, dan rongga zeolit terisi oleh molekul air yang berkoordinasi dengan kation. Rumus umum zeolit adalah $\text{M}_x/\text{n}[(\text{AlO}_2)_x(\text{SiO}_2)_y] \cdot \text{mH}_2\text{O}$ dengan M adalah kation bervalensi n. $(\text{AlO}_2)_x(\text{SiO}_2)_y$ adalah kerangka zeolit yang bermuatan negatif, H_2O adalah molekul air dalam kerangka zeolit, dan m adalah jumlah molekul air.

Mulai tahun 1996 membran zeolit ZSM-5 sangat menarik perhatian karena mempunyai struktur mikropori yang seragam, stabilitas termal yang baik, dan kekuatan mekanik yang tinggi sehingga membran zeolit berpotensi diaplikasikan pada pemisahan dalam industri Petrokimia, pemisahan gas, pemisahan logam-logam berat, menghidroksilasi benzen menjadi fenol, mengoksidasi benzena, sebagai komponen optik, perlengkapan elektronik, sensor, dan penyaring molekul.

Material pendukung yang digunakan dalam mensintesis membran zeolit dalam penelitian ini adalah kasa baja tahan karat. Secara konvensional, sintesis membran zeolit diawali dengan sintesis nano partikel atau zeolit prekursor (cikal bakal zeolit) dalam bentuk gel dielektrodeposisikan pada material pendukung melalui proses hidrotermal untuk mengkristalisasi zeolit. Metoda hidrotermal mempunyai kelemahan karena menggunakan suhu yang tinggi, waktu yang lama, dan biaya produksi yang besar. Selain itu, metoda hidrotermal juga menggunakan autoklaf dengan kapasitas volume yang terbatas (50-300 ml), sehingga pembuatan membran zeolit dalam skala besar sulit dilakukan. Oleh karena itu dilakukan sintesis zeolit pada suhu rendah (di bawah 100°C) tanpa melalui proses hidrotermal. Pratama (2012) telah melakukan sintesis zeolit pada suhu 90°C (tanpa melalui proses hidrotermal) dengan rasio $\text{Si}/\text{Al}=100$, $\text{H}_2\text{O}/\text{Si}=1,69$, $\text{NaOH}/\text{Si}=0,14$, $\text{TPABr}/\text{Si}=0,086$. Pembuatan membran zeolit A dan HS yang dimonitor secara elektrokimia pada suhu 90°C selama 180 menit telah dilakukan oleh Tather dan Elneceve (2005).

Tujuan penelitian ini adalah (1) Mensintesis zeolit ZSM-5 dengan variasi mol H_2O pada suhu rendah (90°C) sehingga diperoleh precursor larutan encer (2) Mengkarakterisasi produk zeolit ZSM-5 dengan difraksi sinar-X (XRD). Manfaat penelitian ini adalah komposisi sintesis zeolit ZSM-5 dengan mol H_2O tertentu yang dapat menghasilkan precursor larutan encer, sehingga dapat diaplikasikan pada sintesis membran ZSM-5 dengan metoda elektrodeposisi.

Macam-macam zeolit

a. Berdasarkan keberadaannya, zeolit ada dua yaitu zeolit alam dan zeolit sintetik.

Zeolit alam mengandung kation-kation K^+ , Na^+ , Ca^{2+} atau Mg^{2+} dan molekul air dalam pori dan oksida bebas di permukaan seperti Al_2O_3 , SiO_2 , CaO , MgO , Na_2O , K_2O dapat menutupi pori-pori atau pusat aktif, sehingga dapat menurunkan kapasitas adsorpsi maupun sifat katalisis dari zeolit. Oleh karena itu zeolit alam perlu diaktivasi terlebih dahulu sebelum digunakan. Zeolit sintetik hanya mengandung kation-kation K^+ atau Na^+ (Cundy dan Cox, 2003).

b. Berdasarkan perbandingan molar Si/Al , zeolit dikelompokkan sebagai berikut:

1. Zeolit dengan kandungan silika rendah (*low silica*) dengan perbandingan molar Si/Al adalah 1.
2. Zeolit dengan kandungan silika sedang (*intermediate silica*) dengan perbandingan molar Si/Al adalah 5 dan sangat selektif untuk pemisahan air dan molekul polar.
3. Zeolit dengan kandungan silika tinggi (*high silica*) dengan perbandingan molar $\text{Si}/\text{Al}=10-100$ atau lebih tinggi, sifatnya sangat hidrofobik dan menyerap molekul yang tidak polar. Contohnya ZSM-5.

Metoda Sintesis Zeolit ZSM-5

1) Metoda Hidrotermal

Reaksi hidrotermal dilakukan pada suhu tinggi (lebih dari 100°C) dalam autoklaf yang berfungsi menjaga laju penguapan sama dengan laju kondensasi. Campuran larutan akan mengalami reaksi kondensasi yaitu reaksi pemutusan dan pembentukan ikatan baru Si, Al-O-Si, Al yang dikatalisis oleh ion hidroksil menghasilkan ikatan penyusun material kristalin (Cundy dan Cox, 2003). Keadaan hidrotermal memiliki sifat fisik yang spesifik, solvasi dan tekanan tinggi, serta transport massa pelarut yang tinggi. Keuntungan sintesis hidrotermal adalah diperoleh kristal tunggal yang lebih besar, lebih murni dan bebas dislokasi, serta struktur yang terbuka.

2) Sintesis zeolit pada suhu rendah

Pratama (2012) telah mensintesis zeolit MFI ZSM-5 dengan suhu rendah tanpa proses hidrotermal dengan perbandingan Si/Al=100, H₂O/Si =1,69, NaOH/Si= 0,14, TPABr/Si=0,086 dalam oven suhu 90°C selama 4 hari, sehingga terbentuk padatan putih. Selanjutnya endapan putih dicuci dengan air dan dipanaskan di dalam oven dengan temperatur 60°C selama 3 jam, kemudian dikalsinasi pada suhu 550°C selama 8 jam.

3) Sintesis zeolit pada suhu rendah dengan variasi mol H₂O

Sintesis zeolit ZSM-5 pada suhu rendah adalah dengan mencampur 0,027 mol NaAlO₂; 0,184 mol NaOH 50% b/b; 0,093 mol TPABr; 2,8 mol Ludox HS-40, dan 21,8 mol H₂O. Selanjutnya dilakukan pengocokan dengan kecepatan 900 rpm selama 30 menit, kemudian dimasukkan ke dalam oven 90°C selama 4 hari. Padatan putih yang terbentuk dicuci dengan akuades dan dipanaskan pada suhu 60°C selama 3 jam, serta dikalsinasi pada suhu 550°C selama 8 jam. Dilakukan juga variasi mol H₂O 130,8 (6x) dan 174,4 (8x).

Karakterisasi Zeolit ZSM-5 dengan Difraksi Sinar-X (XRD)

Difraksi sinar-X digunakan untuk menganalisis padatan kristalin. Jika seberkas sinar-X ditembakkan pada suatu material kristal, maka sinar akan dihamburkan ke berbagai arah. Menurut pendekatan Bragg, kristal dapat dipandang terdiri dari bidang-bidang datar (kisi kristal) yang berfungsi sebagai cermin semi transparan. Sinar-X yang dihamburkan dari bidang kristal menghasilkan sinar terdifraksi, sesuai dengan persamaan Bragg bahwa $n\lambda = 2d \sin \theta$, di mana λ adalah panjang gelombang sinar-X, d adalah jarak antar kisi kristal, θ adalah sudut datang sinar, dan $n = 1, 2, 3, \dots$ adalah orde difraksi (Whiston, 1991).

METODE PENELITIAN

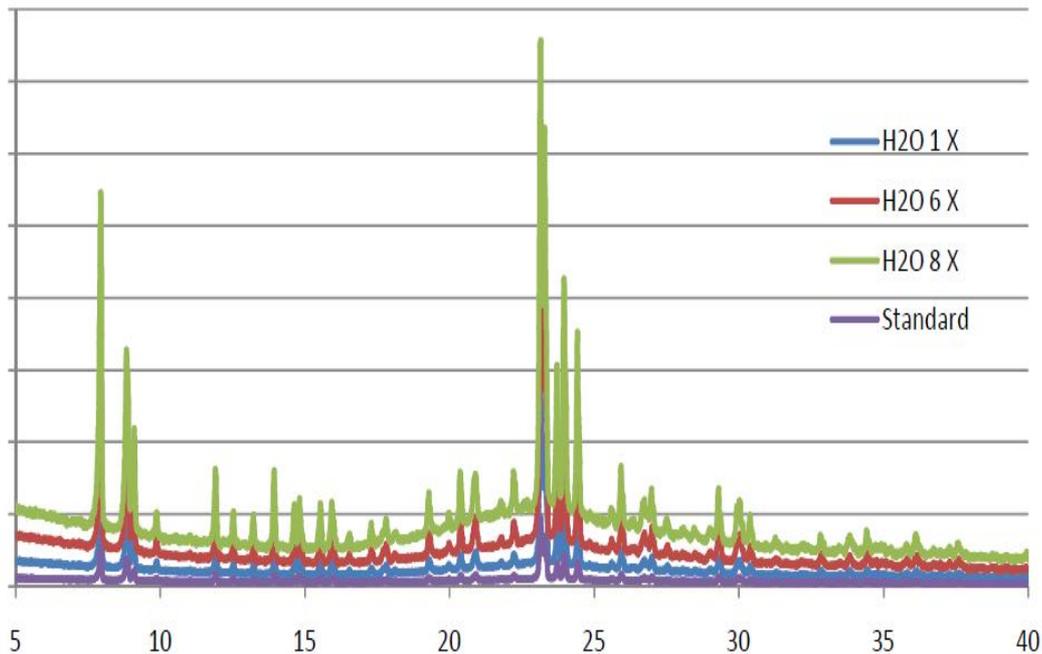
Peralatan yang digunakan adalah seperangkat alat gelas yaitu: gelas kimia, pipet tetes, batang pengaduk, pipet volume, gelas ukur, wadah Polipropilen 50 ml, pH-meter, neraca Analitik, corong Buchner, oven, Shaken/Stirer, oven, X-Ray Diffractometer (XRD) Philips PW 1710, dan FTIR. Bahan-bahan yang digunakan adalah Tetrapropilamonium Bromida (TPA-Br) buatan Merck, H₂O bebas mineral, NaAlO₂ buatan Sigma Aldrich, NaOH 50% b/b buatan Merck, dan ludox HS-40 buatan Aldrich-Chemistry.

Prosedur Penelitian

Sintesis zeolit ZSM-5 pada suhu rendah adalah dengan mencampur 0,027 mol NaAlO₂; 0,184 mol NaOH 50% b/b; 0,093 mol TPABr; 2,8 mol Ludox HS-40 dan 21,8 mol H₂O yaitu dengan mencampur 0,1314 g NaAlO₂ dan 1,3248 g NaOH 50% b/b, kemudian ditambah 1,4572 g TPABr yang sudah dilarutkan dengan 7,3789g H₂O dan 24,7155 g Ludox HS-40 dan dilakukan pengocokan dengan kecepatan 900 rpm selama 60 menit, kemudian dimasukkan ke dalam oven 90°C selama 4 hari. Padatan putih yang terbentuk dicuci dengan akuades dan dipanaskan pada suhu 60°C selama 3 jam, serta dikalsinasi pada suhu 550°C selama 8 jam dan dilakukan variasi molar H₂O 6x dan 8x sehingga diperoleh larutan precursor yang encer dan jernih. Zeolit ZSM-5 yang dihasilkan dikarakterisasi dengan XRD. Diulang prosedur tersebut dengan variasi H₂O 130,8 mol (6x) dan H₂O 174,4 mol (8x)

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pengujian XRD dilakukan pada Zeolit ZSM-5 dengan variasi mol H₂O (1x, 6x, dan 8x) diperoleh hasil seperti pada Gambar 1.



Gambar 1. XRD ZSM-5 standar dan ZSM-5 dengan konsentrasi mol H₂O 6x dan 8x

Berdasarkan Gambar 1 dapat dilihat bahwa ZSM-5 dengan konsentrasi mol H₂O 6x dan 8x bila dibandingkan dengan standar ZSM-5 menunjukkan hasil yang masih baik di mana diperoleh transmittan tertinggi pada 2 tetha 8 dan 2 tetha 23. Selanjutnya dari data XRD dapat dilihat intensitas antara ZSM-5 standar dengan ZSM-5 yang dilakukan variasi H₂O 6x dan 8x tertera pada Tabel 1.

Tabel 1. Intensitas ZSM-5 (*Reference*) (*Reference*) dan ZSM-5 dengan variasi H₂O 130,8 mol (6x) dan H₂O 174,4 mol (8x)

2 tetha	ZSM-5 (<i>Reference</i>)	H ₂ O 130,8 mol(6x)	H ₂ O 174,4 mol (8x)
7,94	10000	10674	10575
23	34.570	15.342	10.932

Selanjutnya dilakukan perbandingan antara intensitas ZSM-5 dengan variasi H₂O 130,8 mol (6x) dan H₂O 174,4 mol (8x) terhadap intensitas ZSM-5 (*Reference*) dan hasilnya tertera pada Tabel 2

Tabel 2. Perbandingan Intensitas ZSM-5 dengan variasi H₂O 130,8 mol (6x) dan H₂O 174,4 mol (8x) dengan Intensitas ZSM-5 (*Reference*)

2 tetha	ZSM-5 (I ₀)	I _{6x} /I ₀	I _{8x} /I ₀
7,94	10000	1,0674	1,0575
23	34.570	0,4438	0,3162
I _i /I _{0 rata} (%)	100	75,60	68,69

Berdasarkan Tabel 1 dan 2, bahwa zeolit ZSM-5 dengan variasi konsentrasi H₂O 1-4 x terbentuk gel, H₂O 6x terbentuk gel dan sedikit larutan, dan H₂O 8x berbentuk larutan. telah berhasil dilakukan dengan H₂O 174,4 mol (8x) dan dihasilkan larutan precursor encer dengan kristalinitas 68,69 %.

KESIMPULAN

Zeolit ZSM-5 telah berhasil disintesis dengan variasi H₂O 174,4 mol (8x) larutan precursor encer dengan kristalinitas 68,7%, sehingga yang dapat diaplikasikan pada sintesis membran zeolit ZSM-5 pada suhu rendah.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih kepada Direktorat Jendral Penelitian dan Pengabdian Masyarakat Pendidikan Tinggi atas dana yang diberikan melalui Penelitian Hibah Bersaing tahun anggaran 2014.

DAFTAR PUSTAKA

- Cundy, C. S., Cox, P. A., 2003. The Hydrothermal Synthesis of Zeolites: History and Development from the Earliest Days to the Present Time. *J. Chemical Reviews*: 103. 663-702.
- Pratama, R. 2012. Sintesis Zeolit pada Suhu rendah (via metoda non-Hidrotermal). Skripsi. Institut Teknologi Bandung.
- Shan, W., Zhang, Y., Yang, W., Ke, C., Gao, Z., Ye, Y., Tang, Y. 2004. Electrophoretic deposition of nanosizes in non-aqueous medium and its Application in fabricating Thin Zeolites Membranes. *J. Microporous and Mesoporous Materials*: 69.35-42.
- Tather, M., and Elnekave, M. 2005. Electrochemical Monitoring of Zeolite Synthesis. *J. Materials Chem. And Physics* 91: 99-103.
- Weitkamp, J. And Puppe, L., 1999. *Catalysis and Zeolites: Fundamentals and Application*. Berlin: Springer-Verlag.
- Whiston, C., Edit. Prichard, F. E., 1991. *X-Ray Methods: Analytical Chemistry by Open Learning*. London: John Willey & Sons.